



Restitution du monoxyde de carbone observé par satellite dans l'infrarouge : validation et variabilité à l'échelle globale

Maya George

► To cite this version:

Maya George. Restitution du monoxyde de carbone observé par satellite dans l'infrarouge : validation et variabilité à l'échelle globale. Sciences de la Terre. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : 2014PA066069 . tel-01037924

HAL Id: tel-01037924

<https://theses.hal.science/tel-01037924>

Submitted on 23 Jul 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Pierre et Marie Curie

Ecole doctorale de Sciences de l'Environnement (ED 129)

Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales (LATMOS)

Restitution du monoxyde de carbone observé par satellite dans l'infrarouge: validation et variabilité à l'échelle globale

Par Maya George

Dirigée par Cathy Clerbaux

Présentée et soutenue publiquement le 7 avril 2014

Devant un jury composé de :

Mme. Nicole Jacquinet	Présidente
M. Jean-François Lamarque	Rapporteur
Mme. Céline Mari	Rapporteur
M. Daniel Hurtmans	Examineur
M. Claude Camy-Peyret	Examineur
Mme. Solène Turquety	Examinatrice-Invitée

Remerciements

J'adresse tout d'abord mes remerciements à Cathy Clerbaux, ma directrice de thèse, avec qui je collabore depuis 2006 et qui m'a encouragée à effectuer cette thèse afin d'évoluer et de valoriser mes travaux de recherche. Je la remercie pour sa confiance et son soutien, ses idées et son enthousiasme, ainsi que pour la grande liberté qu'elle me laisse dans mon travail. C'est un plaisir de travailler à ses côtés.

Un immense merci à Juliette Hadji-Lazaro qui m'a aidée tout au long de cette thèse, pour mes recherches mais également la rédaction du manuscrit. Collaboratrice idéale, elle a été présente, patiente, et m'a fait partager ses connaissances et son expertise. Je la remercie chaleureusement.

Je remercie les membres du jury : Nicole Jacquinet, Céline Mari, Solène Turquety, Jean-François Lamarque, Daniel Hurtmans et Claude Camy-Peyret, pour l'intérêt qu'ils ont bien voulu porter à mon travail.

Je remercie infiniment Michèle, Jennie, Catherine, Sarah S., Pierre-François, Sébastien P., Julien J., Franck, Anni, Julien G., Ariela, Adrien, Sarah H. et Frédéric.

Enfin je remercie ma famille et mes amis qui sont venus assister à ma soutenance : Valérie, Laetitia, Erin, Audrey, Noyale, Cédric, Caroline, Odile, Daniel, Christophe, Emmanuel, Taoufik, Robert, Jean-Pierre, Guillaume, Sandrine, Anne, Christine et Yvan.

Résumé

Observé quotidiennement par des instruments à bord de satellites depuis les années 2000, le monoxyde de carbone (CO) est utilisé comme un traceur de transport de la pollution du fait de sa longue durée de vie (1 à 2 mois) dans la troposphère. Ce gaz est émis principalement par les activités anthropiques (transport, chauffage, industrie) et par les feux (naturels ou provoqués pour le brûlage de la biomasse). Le CO joue un rôle central dans la chimie troposphérique car il est détruit par le radical OH, et régule dès lors la capacité oxydante de l'atmosphère.

La première partie de mon travail de thèse a consisté à valider les mesures de CO obtenues par l'instrument en occultation solaire ACE-FTS, en utilisant des observations indépendantes d'instruments sol, avion et satellite.

Le deuxième volet de mon travail repose sur les données obtenues par la mission IASI, lancée en 2006 à bord du satellite MetOp-A. Nous disposons de 6 ans de données CO IASI qui sont utilisées afin d'étudier les épisodes de feux, de suivre les panaches de pollution lors de campagnes de mesures, d'établir des tendances, d'élaborer des prévisions de pollution (projet MACC), ou encore d'améliorer les inventaires d'émission. Mes travaux de thèse ont surtout concerné l'étude des variabilités temporelles et spatiales, et j'ai contribué à la validation des restitutions qui sont distribuées à une large communauté d'utilisateurs scientifiques.

Enfin, le dernier volet de mon travail a consisté à quantifier et expliquer les différences entre les produits CO de MOPITT et de IASI, qui se place comme son successeur. Le poids du choix des hypothèses *a priori* inhérent aux algorithmes d'inversion est étudié : un nouveau produit MOPITT utilisant le profil et la matrice de variance-covariance *a priori* de IASI a été élaboré. Alors que les colonnes totales de ce nouveau produit se comparent bien au produit initial, l'influence du profil mais surtout de la matrice de variance-covariance *a priori* (qui autorise plus ou moins de variabilité lors de l'inversion) est démontrée lors de l'étude des profils.

Abstract

Carbon monoxide (CO) is measured from space since the year 2000 by several instruments. CO plays an important role in atmospheric chemistry and climate as it is the largest sink of the hydroxyl radical (OH), and thus impacts the oxidizing power of the atmosphere and the concentrations of greenhouse gases (such as methane and ozone). CO is mainly formed by the incomplete combustion of fossil, bio-fuels and biomass burning. Due to its long lifetime (1 to 2 months) it is therefore used as a pollution tracer in the troposphere.

The first part of this PhD work consists of validating CO measurements from the limb-viewing ACE-FTS instrument using a set of independent data measured by instruments onboard aircraft, satellites and at ground-based stations.

The second part of my work consists of studying the temporal and spatial variability of CO and focuses on studying 6 years of CO data measured by IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer), launched in 2006 onboard the MetOp-A satellite. I contributed to the validation of the retrieved data, which are now widely distributed to the scientific community, with different applications. For example the study of fire events, the follow-up of pollution plumes during measurements campaigns, building inter-annual trends, generating pollution forecasts (MACC project), and improving emission inventories.

The last part of my PhD work consists of quantifying and explaining the differences between MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) and IASI CO products. Due to the fact that IASI will likely outlive MOPITT, it is essential to evaluate the CO retrievals from these instruments against each other. I studied the impact of the *a priori* assumptions choice which is a major component of the retrieval algorithms. A new MOPITT product using IASI *a priori* profile and covariance matrix is built. Total CO columns of this new product are globally in good agreement with the initial MOPITT product. Local differences are investigated and shown to be due to the influence of the *a priori* profile and mainly its *a priori* covariance matrix which can be seen when studying the shape of the retrieved profiles.

Table des matières

Table des matières	7
Introduction générale.....	11
Chapitre 1: Mesure du monoxyde de carbone.....	15
1.1 Le monoxyde de carbone.....	15
1.1.1 Sources et puits.....	15
1.1.2 Le CO, un traceur de transport de la pollution	17
1.1.3 Emissions à l'échelle globale	18
1.1.4 Le CO et la qualité de l'air	19
1.1.5 Les réseaux de mesures du CO.....	22
1.2 Le CO vu de l'espace avant IASI	26
1.2.1 MAPS	28
1.2.2 IMG/ADEOS.....	28
1.2.3 MOPITT/TERRA.....	30
1.2.4 AIRS/AQUA	31
1.2.5 TES/AURA	32
1.2.6 MIPAS/Envisat.....	32
1.2.7 ACE-FTS/SCISAT-1.....	32
Chapitre 2: Observations IASI et problème inverse	35
2.1 IASI	35
2.1.1 Géométrie d'observation	37
2.1.2 Spécifications techniques	37
2.2 Eléments de transfert radiatif et inversion optimale.....	43
2.2.1 Eléments de transfert radiatif.....	43
2.2.2 Le signal associé au CO dans l'infrarouge thermique.....	46
2.2.3 Restitution des concentrations de CO : la méthode d'estimation optimale	49
2.2.4 Lissage de profils par les fonctions de lissage.....	57
2.3 FORLI-CO.....	58
Chapitre 3: Le CO mesuré par la mission ACE-FTS	59
3.1 Introduction aux chapitres 3, 4 et 5	59
3.2 Résumé long de l'article de validation des données CO de ACE-FTS	60
3.3 Article 1	62
Chapitre 4: Le CO mesuré par la mission IASI	89
4.1 Six ans de données IASI.....	89
4.1.1 Les données FORLI-CO.....	89

4.1.2	Colonnes partielles et colonnes totales.....	95
4.1.3	Distributions mensuelles (6 ans)	96
4.1.4	Coupe latitudinale.....	104
4.1.5	Variabilité sur 6 ans.....	105
4.1.6	Profils moyens.....	109
4.2	Validation	111
4.2.1	Résumé long de l'article de validation des données CO de IASI.....	111
4.2.2	Article 2.....	113
4.2.3	Autres résultats de validation publiés suite à l'article	128
4.3	Etudes scientifiques utilisant des données FORLI-CO	132
4.3.1	Prévision de pollution.....	133
4.3.2	Amélioration des simulations de modèle	135
4.3.3	Feux en Russie en 2010.....	137
4.3.4	Tendances.....	140
4.3.5	Estimations d'émissions de CO	141
4.3.6	Prévision de plans de vol pour des campagnes de mesures.....	144
Chapitre 5: MOPITT/IASI : comparaison et étude de l'influence de l' <i>a priori</i> dans le processus d'inversion		147
5.1	Introduction	147
5.2	Comparaison directe des colonnes totales	148
5.2.1	Distributions à l'échelle globale et coupe latitudinale.....	148
5.2.2	Variabilité sur 5 ans au-dessus de douze régions	151
5.3	Etude de l'impact des hypothèses <i>a priori</i> dans le processus d'inversion	155
5.3.1	Profils et matrices de variance-covariance <i>a priori</i>	155
5.3.2	Etudes scientifiques publiées.....	157
5.3.3	Méthodologie.....	158
5.3.4	Résultats pour les colonnes totales.....	159
5.3.5	Résultats pour les profils	166
5.4	Etudes de cas	174
5.4.1	Sur le Canada, loin des sources de CO.....	174
5.4.2	Sur la Chine, dans une région source de CO	175
5.4.3	Sur les Etats-Unis, sur le trajet d'un panache de feux	176
5.5	Conclusion.....	177
Conclusion et perspectives		181
Annexe A	Lissage d'un profil et comparaison de colonnes totales.....	187
Annexe B	Les méthodes de mesure du CO	191
Annexe C	Le spectromètre à transformation de Fourier	199
Annexe D	Différences jour/nuit mensuelles 2013.....	203

Annexe E	Erreurs totales mensuelles 2013	205
Annexe F	Le contraste thermique	209
Annexe G	DOFS moyens	213
Annexe H	Ratios colonne partielle/colonne totale	217
Bibliographie		221
Abréviations et acronymes		235

Introduction générale

Les activités humaines modifient la composition de l'atmosphère terrestre. A l'échelle du globe, l'augmentation des concentrations des gaz qui absorbent le rayonnement infrarouge a un impact sur le climat. A l'échelle des villes, les problèmes de qualité de l'air sont devenus une préoccupation majeure pour beaucoup de citoyens, et le transport transcontinental de panaches de pollution impose de considérer les impacts potentiels des augmentations des émissions de polluants à l'échelle de la planète.

La surveillance de l'atmosphère et l'étude de l'évolution future de sa composition reposent sur la combinaison d'observations faites depuis le sol, par des instruments embarqués sur des avions et des satellites, et l'intégration des données dans des modèles atmosphériques. Le sondage satellitaire par télédétection passive a connu un essor important depuis une quinzaine d'années, et s'impose maintenant comme un outil indispensable pour diagnostiquer l'impact de l'activité anthropique sur l'environnement.

Le monoxyde de carbone (CO) joue un rôle important dans la chimie troposphérique. Il se forme lors de processus de combustion incomplète des hydrocarbures fossiles ou de biomasse. Il est de plus produit lors de l'oxydation du méthane ou des composés organiques volatils non méthaniques par le radical hydroxyle OH. Son puits principal provient de sa réaction avec OH, ce qui lui donne un rôle important dans le contrôle de la capacité oxydante de l'atmosphère, régulant ainsi les concentrations de méthane et d'ozone. Son temps de vie, de l'ordre de quelques semaines, lui permet d'être un excellent traceur de transport de la pollution.

Le LATMOS travaille depuis les années 1990 sur la mission de l'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer), un spectromètre à transformation de Fourier embarqué à bord de la plate-forme météorologique européenne MetOp (Meteorological Operational satellite programme). IASI a été conçu pour mesurer les spectres du système Terre-atmosphère dans l'infrarouge thermique en visée au nadir, avec un balayage perpendiculaire à la trace. Il a été développé conjointement par le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) et Eumetsat (European organization for the exploitation of meteorological

satellites) pour mesurer des paramètres météorologiques, de manière opérationnelle dans la troposphère et la basse stratosphère. En plus des objectifs météorologiques (température et vapeur d'eau), IASI a également été conçu pour mesurer toute une série de gaz traces atmosphériques tels que le CO, mais aussi l'ozone, la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone, l'acide nitrique ou encore le méthane.

Mes travaux s'inscrivent dans le cadre de l'exploitation des données fournies par cette mission, et portent en particulier sur le CO. Nous avons aussi eu accès aux données fournies par d'autres sondeurs mesurant le rayonnement dans l'infrarouge, notamment MOPITT/Terra (lancé fin 1999), un radiomètre à corrélation qui mesure le CO, et ACE-FTS/SCISAT (lancé en 2003), un sondeur en occultation solaire qui couvre une gamme d'altitude qui s'étend de 6 à 100 km.

Les travaux rapportés dans ce manuscrit de thèse :

- présentent six ans de données de CO restitués par l'équipe LATMOS-ULB (grâce à l'algorithme d'inversion FORLI) à partir des mesures de l'instrument IASI. Ces produits CO IASI sont utilisés par une large communauté d'utilisateurs scientifiques afin de construire des prévisions de pollution (projet MACC), d'étudier des épisodes de feux, de suivre des panaches de pollution lors de campagnes de mesures, d'établir des tendances ou encore d'améliorer des inventaires d'émissions ;
- décrivent les exercices de validation des données CO fournies par la mission ACE/FTS et des données CO IASI avec des mesures sol, avion et satellites ;
- comparent en détail les données CO IASI aux données CO MOPITT, afin de quantifier au mieux et de comprendre leurs différences pour établir des tendances sur le long terme. Ce travail a été mené en collaboration avec l'ULB (Université Libre de Bruxelles) et le NCAR (National Center for Atmospheric Research).

Le premier chapitre de ce manuscrit présente le CO, ses sources et puits et la distribution de sa concentration aux échelles locale et globale. Ce chapitre aborde également la mesure de la concentration du CO dans le cadre de réseaux de mesure et par des instruments embarqués sur des satellites. Le chapitre 2 décrit la mission IASI/MetOp et les problèmes direct et indirect de la restitution de la concentration d'une espèce atmosphérique à partir de la mesure du rayonnement du système Terre-atmosphère dans le domaine spectral de l'infrarouge

thermique. Dans ce chapitre, l'outil de restitution FORLI est également évoqué. La suite du manuscrit s'attache à décrire les résultats de mes recherches. Après la validation des produits CO de l'instrument ACE-FTS (chapitre 3), le chapitre 4 présente six années de données FORLI-CO, dont une section sur leur validation. Les données sont décrites sous forme de distributions à l'échelle globale ou encore de séries temporelles à l'échelle locale. Des exemples d'utilisation des données FORLI-CO sont également exposés. Enfin, le chapitre 5 présente une étude sur l'impact des hypothèses *a priori* dans les processus d'inversion des données IASI et des données MOPITT.

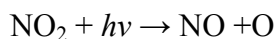
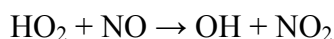
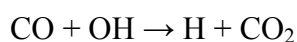
Chapitre 1: Mesure du monoxyde de carbone

1.1 Le monoxyde de carbone

1.1.1 Sources et puits

Le monoxyde de carbone (CO) est émis directement dans l'atmosphère lors de processus de combustion incomplète (déficiente en oxygène) des hydrocarbures fossiles ou de biomasse. Les hydrocarbures fossiles (pétrole, gaz naturel, charbon) sont utilisés dans les processus industriels, la production d'énergie, le chauffage, ou encore par les véhicules de transport routier. Les feux de savane, le brûlage des déchets agricoles et les feux de forêts sont des exemples de feux de biomasse. Le CO est également produit dans l'atmosphère lors de l'oxydation du méthane ou des composés organiques volatils non méthaniques (comme l'isoprène) par le radical hydroxyle OH.

Son puits principal est sa réaction avec le radical hydroxyle OH, le principal agent nettoyant de l'atmosphère. Cette réaction représente environ 90-95% du puits de CO dans la majeure partie de la troposphère (Logan et al., 1981). Cette réaction représente également 75% du puits de OH (Thompson, 1992). Le reste des radicaux OH réagit avec le CH₄ et les hydrocarbures non-méthaniques pour produire du CO₂. Le CO joue donc un rôle important dans la capacité oxydante de l'atmosphère, régulant ainsi les concentrations de CH₄: si la concentration de CO augmente dans l'atmosphère, le radical OH sera davantage détruit lors de sa réaction avec le CO et sera ainsi moins disponible pour des réactions avec le CH₄.





Ainsi, pour une molécule de CO oxydée, une molécule d'O₃ est produite. Le CO a donc un impact sur la qualité de l'air. Il est un précurseur important de la production photochimique de l'ozone en présence de monoxyde d'azote.

Le CO n'est pas directement considéré comme un gaz à effet de serre mais il joue un rôle sur le climat du fait de son impact sur le temps de vie de gaz à effet de serre (e.g. Prather et al., 1996 ; Daniel and Solomon, 1998 ; Prather and Ehhalt, 2001). Ainsi émettre 400 Tg de CO (~ émissions annuelles dues au brûlage de la biomasse) est équivalent à émettre 20 Tg de CH₄ (~ émissions annuelles dues aux termites) (Wild and Prather, 2000 ; Derwent et al., 2001). En tant que précurseur de l'ozone troposphérique et du méthane, le CO a un forçage radiatif indirect de 0.2 W.m⁻² (Forster et al., 2007).

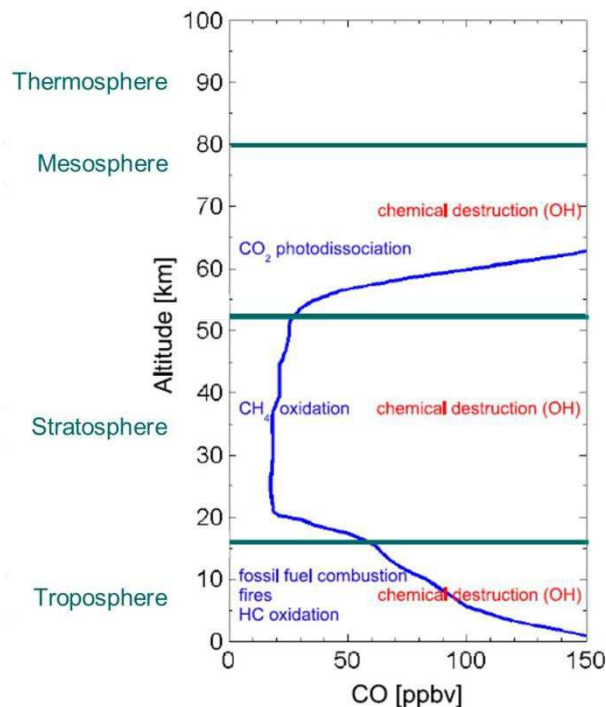


Fig. 1.1- Profil vertical schématisique du rapport de mélange du CO en fonction de l'altitude, avec les différentes sources (en bleu) et puits (en rouge), d'après Clerbaux et al. (2008).

La distribution verticale du CO, avec ses sources et ses puits, est schématisée sur la Fig. 1.1. Le rapport de mélange¹ du CO dans la troposphère varie entre 50 et 150 ppbv mais les

¹ Le rapport de mélange en volume d'un gaz minoritaire indique la proportion du gaz minoritaire en nombre de molécules par rapport au nombre de molécules d'air sec. Lorsque cette proportion est très petite on utilise des facteurs multiplicatifs et on note le rapport de mélange en ppmv (parties par million en volume, facteur 10⁶), ou ppbv (parties par milliard en volume, facteur 10⁹), ou même en pptv (parties par trillion en volume, facteur 10¹²).

concentrations de CO peuvent être cinq à dix fois plus élevées au voisinage des sources de combustion et dans les panaches. Dans des régions reculées de l'hémisphère sud et dans les basses couches, les rapports de mélange sont de 35-40 ppbv, en raison de l'éloignement des sources anthropiques et de la présence des mers qui couvrent une grande partie de l'hémisphère sud (Novelli et al., 1998 ; Duncan et al., 2007). Au-dessus de 50 km, dans la mésosphère et la thermosphère, la principale source de CO est la photolyse du CO₂ et le rapport de mélange de CO atteint 5-20 ppmv à 80 km.

1.1.2 Le CO, un traceur de transport de la pollution

Le temps de vie du CO, qui dépend de la latitude, de l'altitude et de la saison, varie de quelques semaines à deux mois dans la troposphère (Logan et al., 1981). Cela en fait donc un bon traceur des sources d'hydrocarbures qu'il s'agisse de pollution anthropique ou de feux de biomasse.

La durée de vie du CO dans la troposphère n'est pas suffisante pour lui permettre d'être bien mélangé à l'échelle globale, le passage d'un hémisphère à l'autre nécessitant au moins un an (Fig. 1.2, Jacob (1999)). A l'échelle d'un hémisphère, le transport d'un constituant chimique nécessite plusieurs mois. La durée de vie maximale du CO est donc trop courte pour uniformiser sa concentration à l'échelle d'un hémisphère. Sa distribution n'est donc uniforme ni dans le temps ni dans l'espace, elle est très marquée par les zones sources.

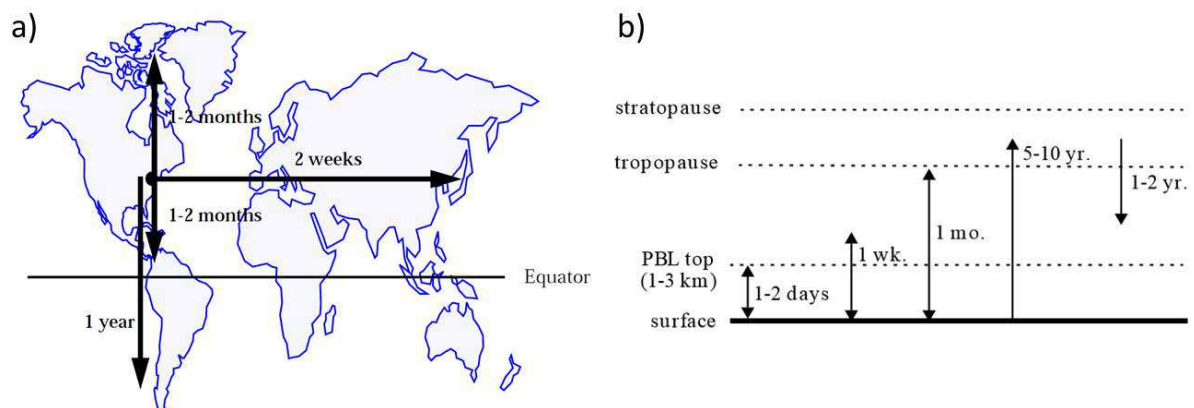


Fig. 1.2 - Schéma des échelles de temps typiques pour le transport horizontal des constituants chimiques dans la troposphère (a) et pour le transport vertical (b). D'après Jacob (1999) (PBL signifie Planetary Boundary Layer, c'est-à-dire la couche limite terrestre).

1.1.3 Emissions à l'échelle globale

La Table 1.1 présente le bilan global estimé du CO, en détaillant les différents puits et sources. Il est important de noter les incertitudes de ces estimations. En effet, les fourchettes sont parfois très larges, pouvant aller du simple au double. Si on effectue la somme des valeurs minimales et des valeurs maximales des sources de la Table 1.1, on obtient un total estimé entre 1430 et 2890 Tg CO/an.

Table 1.1 - D'après la table 5.4 de Brasseur et Solomon (2005) : Global Budget of Carbon Monoxide (Tg CO.yr⁻¹), mise à jour grâce aux estimations pour l'année 2005 de Claire Granier (communication personnelle).

Sources	Amplitude (Tg CO/an)
Combustion de la biomasse	260-490
Combustibles fossiles	490-640
Oxydation du méthane	400-800
Oxydation des hydrocarbures non méthaniques	200-600
Végétations	70-160
Océans	10-200
TOTAL (Σ_{\min} ; Σ_{\max})	1430-2890
Puits	
Réaction avec OH	1400-3000
Dépôt au sol	100-600
Perte vers la stratosphère	~100
TOTAL (Σ_{\min} ; Σ_{\max})	1600-3700

Par ailleurs, Prather and Ehhalt (2001) estiment les sources annuelles de CO dans la troposphère à 2000-3000 Tg. Les émissions directes de CO sont globalement de 500-600 Tg par an pour les émissions anthropiques et de 300-600 Tg par an pour les émissions liées aux feux de biomasse (e.g., Granier et al., 2011 ; van der Werf et al., 2010). Notons que les feux de forêt ne représentent qu'un faible pourcentage par rapport aux feux de savane et au brûlage des déchets agricoles (Badr and Probert, 1995).

Le trafic routier est à l'origine de 85% des émissions de CO dues à la combustion des énergies fossiles en 2008 aux Etats-Unis (<http://www.epa.gov/air/emissions/>) et de seulement

26% pour les émissions de 2011 en Europe (EEA², 2013). Cette source diminue depuis les années 1990 dans les pays industrialisés (EEA, 2013). Mais il est difficile d'établir une tendance pour les pays en développement. Pour l'est de l'Asie, on estime que les émissions anthropiques ont augmenté de 34% entre 2000 et 2008 (Kurokawa et al., 2013). Enfin, une carte de l'inventaire des émissions de CO MACCity (sources anthropiques) pour 2012 est présentée sur la Fig. 1.3.

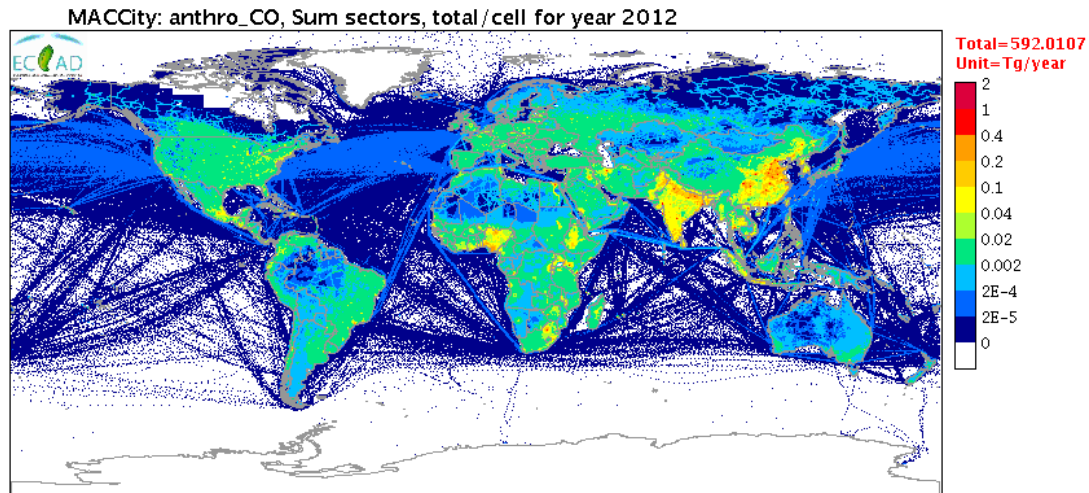


Fig. 1.3 - Sources anthropiques de CO de l'inventaire d'émission MACCity (Source : <http://eccad.pole-ether.fr>).

Duncan et al. (2007) ont noté une diminution de 2% par an des émissions de CO dans les hautes latitudes (au-dessus de 63°N) entre 1988 et 1997. Les auteurs expliquent cette tendance par la diminution des émissions en Europe. Kumar et al. (2013) font part d'une diminution de 0.31 ± 0.30 ppbv/an pour l'Atlantique nord, tendances observées au Pico Mountain Observatory dans les Açores et reproduites par le modèle GEOS-Chem. D'autre part, Worden et al. (2013) ont estimé une diminution de 1% par an des émissions de CO dans l'hémisphère nord, entre 2001 et 2011 (cf. section 4.3.4).

1.1.4 Le CO et la qualité de l'air

Actuellement en France, les émissions de CO ne dépassent pas les normes de qualité de l'air, fixées à $10\,000\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ (ou 8.7 ppmv) en moyenne sur 8 heures. Cette valeur limite est largement respectée en situation de fond (maximum en 2012 = $1600\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ ou 1.4 ppmv) ainsi

² European Environment Agency

qu'à proximité du trafic (maximum = 2900 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ou 2.5 ppmv). AIRPARIF (association assurant la surveillance de la qualité de l'air en Ile-de-France) montre que les concentrations maximales sur 8 heures en Ile-de-France ont fortement baissées depuis 15 ans (Fig. 1.4). Les teneurs maximales sont aujourd'hui 10 fois inférieures à celles relevées il y a 15 ans, du fait des progrès technologiques entraînant une diminution des quantités de CO émises par les véhicules routiers. Les teneurs mesurées ces dernières années sont les plus faibles de l'historique. L'OMS (Organisation Mondiale de la Santé) recommande des niveaux d'exposition (concentrations et durées) au-dessous desquels il n'a pas été observé d'effets nuisibles sur la santé humaine ou sur la végétation (cf. Fig. 1.5).

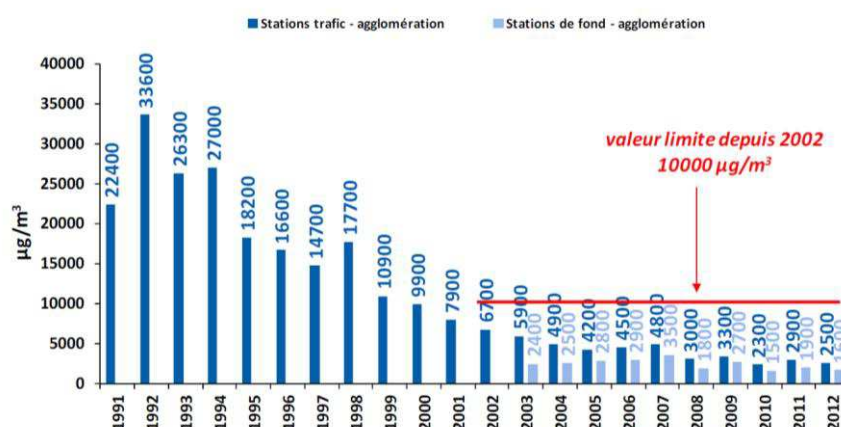


Fig. 1.4 - Evolution des concentrations maximales sur 8 heures de CO en Ile-de-France de 1991 à 2012 (Bilan AIRPARIF 2012, http://www.airparif.asso.fr/_pdf/publications/bilan-2012.pdf).

Polluants	Durée d'exposition								UR Vie ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ⁻¹
	10 mn	15 mn	30 mn	1 heure	8 heures	24 heures	Semaine	année	
Monoxyde de carbone (CO)		100 000	60 000	30 000	10 000				

Fig. 1.5 - Niveaux d'exposition au CO (concentrations en microgrammes par mètre cube d'air et durées) au-dessous desquels il n'a pas été observé d'effets nuisibles sur la santé humaine ou sur la végétation, selon l'OMS (<http://www.airparif.asso.fr/reglementation/recommandations-oms>). Pour information, 100 000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 87$ ppmv ; 60 000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 52$ ppmv ; 30 000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 26$ ppmv et 10 000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 8.7$ ppmv.

Pour étudier l'atmosphère urbaine sur Paris, le LATMOS et le LPMAA³ se sont associés pour développer une plate-forme de recherche expérimentale, QualAir (<http://qualair.aero.jussieu.fr>), incluant un laboratoire connecté à de nombreux instruments situés sur les toits de l'Université Pierre et Marie Curie, au centre de Paris. Parmi ces instruments, on trouve un analyseur de CO par absorption dans l'infrarouge à corrélation gazeuse (Annexe B), CO11M (<http://qualair.aero.jussieu.fr/LPMAA/CO11M>). Un exemple de série temporelle mesuré par cet instrument en janvier 2009 est donné sur la Fig. 1.6, où un pic à plus de 2 ppmv est observé autour du 11 janvier.

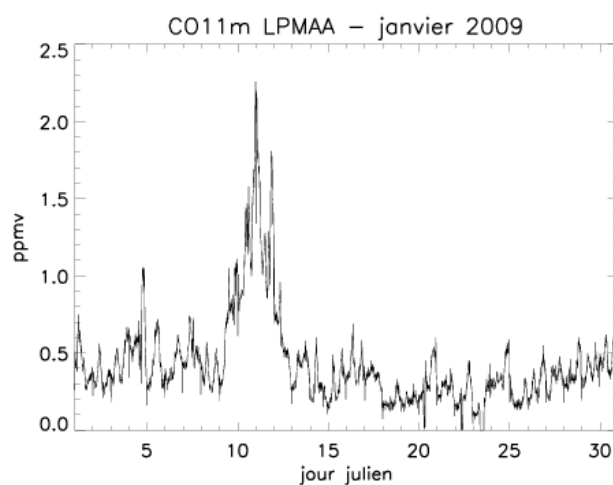


Fig. 1.6 – Exemple de série temporelle de concentration de CO pour le mois de janvier 2009, mesuré à la station QUALAIR, sur le campus de l'UPMC (<http://qualair.aero.jussieu.fr>), avec CO11M, un analyseur de CO par absorption dans l'infrarouge à corrélation gazeuse (Annexe B).

³ Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique

1.1.5 Les réseaux de mesures du CO

Dans les années 1980-90, des réseaux de mesures de surface et aéroportés ont été mis en place afin de surveiller la composition chimique de l'atmosphère. Ces réseaux permettent de surveiller le CO à différents endroits du globe. Quand des profils sont mesurés, leur résolution verticale est très bonne, meilleure que les profils fournis par les instruments embarqués sur des satellites, comme IASI, ACE-FTS et MOPITT dont il est question dans cette thèse. Les réseaux de mesures permettent l'estimation de tendances sur le long terme. Ces mesures servent également à la validation des mesures satellite.

Les différentes méthodes qui permettent de mesurer le CO sont présentées dans l'Annexe B. Le spectromètre à transformation de Fourier fait l'objet de l'Annexe C.

1.1.5.1 Les réseaux de mesures de surface

Le réseau international **NDACC**⁴ est composé de plus de 70 stations (Fig. 1.7(a)). Son but est l'observation et la compréhension de l'état physique et chimique de la stratosphère et de la haute troposphère, et, plus particulièrement, l'étude de l'impact des changements dans la stratosphère sur la troposphère et sur le climat. La surveillance de la couche d'ozone est une priorité. Depuis 1991, de nombreuses espèces sont mesurées : O₃, H₂O, BrO, OClO, ClO, HF, HCl, ClONO₂, NO, NO₂, HNO₃, CO₂, CH₄, N₂O, CO, etc. Les instruments qui mesurent le CO sont des spectromètres à transformation de Fourier (Annexe C) sondant dans le domaine spectral de l'infrarouge : des spectromètres FTIR (Fourier Transform InfraRed).

Le réseau **TCCON**⁵ comprend une vingtaine de stations sol (Fig. 1.7(b)) qui mesurent des colonnes de CO₂, CH₄, N₂O, HF, CO, H₂O et HDO grâce à des spectromètres à transformation de Fourier dans la région spectrale du proche infrarouge. Certains sites fournissent des données depuis 2004 (voir <http://tccon.ipac.caltech.edu/> pour la liste des stations et la date de début de disponibilité des données en fonction des stations).

⁴ Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (www.ndacc.org)

⁵ Total Carbon Column Observing Network

Le CMDL⁶ était un laboratoire spécialisé dans le suivi du climat, qui faisait partie de la NOAA⁷. Il a commencé à faire des mesures de CO en 1988 sur 3 sites. Des échantillons d'air étaient capturés dans des flacons puis analysés dans un laboratoire à Boulder. Fin 1995, 61 sites effectuaient des mesures de CO. En octobre 2005, le CMDL a fusionné avec cinq autres laboratoires de la NOAA pour former le **ESRL**⁸. Actuellement, au sein de l'ESRL, le CCGG⁹ conduit des recherches pour comprendre le cycle du carbone au niveau global ainsi que son impact sur le climat. Des mesures sont effectuées pour déterminer les niveaux de fond, les tendances et les causes de variabilité de gaz comme le CO₂, le CH₄ et le CO. 88 sites d'observations mesurent le CO grâce à des flacons (http://www.esrl.noaa.gov/gmd/dv/data/?parameter_name=Carbon%2BMonoxide).

Des produits utilisant les données ESRL sont disponibles via GLOBALVIEW-CO (http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/globalview/co/co_intro.html).

ICOS¹⁰ est un programme européen dont l'objectif est de fournir des observations sur le long terme nécessaire à la compréhension du cycle du carbone et des émissions de gaz à effet de serre. Un réseau européen de stations et de centres de traitement de données est en cours de développement depuis 2008. Le CO₂, le CH₄, le CO ainsi que d'autres espèces seront mesurées (<http://www.icos-infrastructure.eu/>).

1.1.5.2 Le réseau de mesures aéroportées

Le programme **MOZAIC**¹¹ a fourni des mesures d'ozone, de vapeur d'eau, de monoxyde de carbone et d'oxydes d'azote depuis 1999. L'acquisition de ces données, ainsi que d'observations météorologiques (force et direction du vent, température) se faisait automatiquement lors de vols commerciaux internationaux (décollage, vol et atterrissage, pour des vols aller et retour) depuis l'Europe vers l'Afrique, l'Amérique, le Moyen-Orient et l'Asie. Le programme **IAGOS** (depuis juillet 2011) est le successeur de MOZAIC avec la perspective de devenir une infrastructure à long terme pour la surveillance de l'atmosphère

⁶ Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory

⁷ National Oceanic and Atmospheric Administration

⁸ Earth System Research Laboratory

⁹ Carbon Cycle-Greenhouse Gases group

¹⁰ Integrated Carbon Observation System

¹¹ Measurements of OZone aboard in-service Airbus airCraft

(Fig. 1.7(c)). En plus des espèces mesurées dans le cadre de MOZAIC, une instrumentation plus complète permet la mesure des particules nuageuses et, suivant les options de l'instrument, des aérosols, du CH₄ ou du CO₂.

Le CO est mesuré systématiquement à bord d'Airbus A340 depuis décembre 2001 (Nedelec et al., 2003). Les mesures sont effectuées par un instrument s'appuyant sur la technique de corrélation à filtre gazeux dans l'infrarouge (cf. Annexe B) dont la résolution temporelle est de 30 s (ce qui correspond à une distance de vol de 7.5 km à vitesse de croisière) et la précision de ± 5 ppbv. Pendant la durée des vols, l'altitude de l'appareil varie entre 8 et 12.5 km. Pour les études de validation, ce sont principalement les mesures de profils au décollage et à l'atterrissage qui sont utilisées.

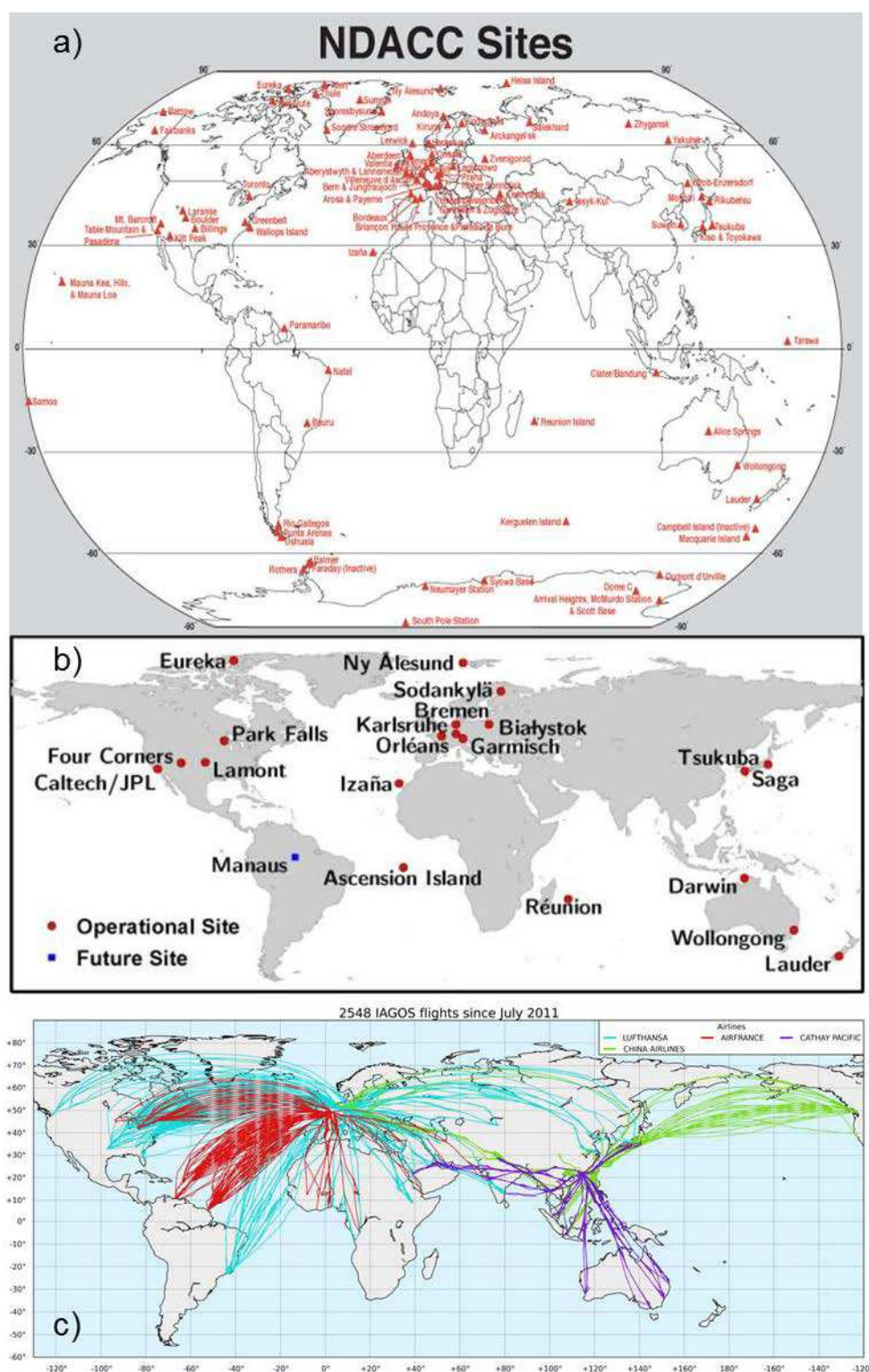


Fig. 1.7 - Réseaux NDACC (a), TCCON (b), et vols IAGOS opérés entre juillet 2011 et décembre 2013 (c).

1.2 Le CO vu de l'espace avant IASI

Nous allons décrire ici les différentes missions qui ont précédé la mission IASI/MetOp et qui mesurent également le CO, en nous limitant aux instruments sondant l'atmosphère dans l'infrarouge thermique.

Il existe deux principaux types de visée pour les instruments embarqués sur des satellites mesurant la composition chimique de l'atmosphère: la visée au nadir vers la Terre et la visée au limbe vers le Soleil, une étoile, ou sans source de fond (Fig. 1.8).

Dans le cas d'une visée au nadir, le capteur spatial mesure le rayonnement émis et réfléchi par la surface de la Terre après sa traversée de l'atmosphère. Dans ce cas, la résolution verticale du profil atmosphérique restitué est limitée, dépendant des caractéristiques du capteur. Généralement, la mesure au nadir est complétée par un balayage perpendiculaire à la trace du satellite, d'où une bonne résolution horizontale de l'instrument : c'est le cas de l'instrument IASI à bord de MetOp, mais pas de TES à bord d'AURA.



Fig. 1.8 - Vue artistique d'un satellite visant au limbe (à gauche) et d'un satellite visant au nadir (à droite).

Dans le cas d'une visée au limbe, l'instrument pointe tangentiellement à la Terre, effectuant des mesures au travers de couches distinctes de l'atmosphère. On parlera d'occultation si le Soleil ou d'autres étoiles sont visés. On peut également observer l'atmosphère terrestre sans source de fond. C'est alors l'émission atmosphérique et sa transmission à travers les couches

successives que l'on mesure. La visée au limbe permet d'obtenir une résolution verticale fine du profil restitué (de 1 à 3 km) mais une résolution horizontale grossière (~100 km ou plus). Si le satellite pointe vers le Soleil, on parlera de visée en occultation solaire, dont les mesures offrent l'avantage d'une source intense de rayonnement, ce qui se traduit par un rapport signal sur bruit (SNR, pour Signal to Noise Ratio) élevé qui permet le sondage de molécules présentes en faibles concentrations : c'est le cas de l'instrument ACE-FTS à bord de SCISAT-1.

Les premières mesures de CO dans l'infrarouge thermique depuis l'espace ont été effectuées par l'instrument MAPS (Measurement of Air Pollution from Space) depuis la navette spatiale Challenger (Reichle et al., 1986, 1990). Le spectromètre à transformation de Fourier IMG/ADEOS est le précurseur des instruments nadir à haute résolution spectrale. Il existe actuellement plusieurs instruments défilants mesurant le CO dans l'infrarouge : quatre par visée au nadir (MOPITT/TERRA, AIRS/AQUA, TES/AURA et IASI/MetOp) et un par visée au limbe (ACE-FTS/SCISAT-1). L'instrument MIPAS/Envisat a également fourni des mesures de CO par visée au limbe mais il ne fonctionne plus depuis avril 2012. La Table 1.2 résume les principales caractéristiques de ces missions (la mission IASI/MetOp est décrite dans la section 2.1).

Table 1.2 - Principales caractéristiques des missions embarquées sur satellite qui utilisent l'infrarouge thermique pour sonder l'atmosphère et mesurer le CO. La mission IASI/MetOp est décrite dans la section 2.1.

Mission/Plate-forme Agence	Instrument	Mode de visée Taille du pixel Couverture Altitude sondée	Espèces mesurées	Période de fonctionnement
IMG/ADEOS NASDA	FTS OPD: 10 cm	Nadir 8 x 8 km 1 pixel 0-30 km	H ₂ O, CO ₂ , CH ₄ , N ₂ O, O ₃ , CO, CFC-11, CFC-12, CFC-113, HCFC-22, HNO ₃	Août 1996- Juin 1997
MOPITT/TERRA NASA	Spectromètre à corrélation	Nadir + balayage 22 x 22 km 1 pixel 0-25 km	CO	Décembre 1999 Toujours actif
AIRS/AQUA NASA	Spectromètre à réseau I/ΔI=1200	Nadir + balayage 13.5 x 13.5 km 9 pixels 0-30 km	H ₂ O, CO ₂ , CH ₄ , O ₃ , CO, (SO ₂)	Mai 2002 Toujours actif

TES/AURA NASA	FTS OPD : 8.45 cm (nadir) – 33.8 cm (limbe)	Nadir + pointage 5.3 x 8.3 km 1 pixel 0-32 km	H ₂ O, O ₃ , CO, CO ₂ , CH ₄ , NO, N ₂ O, NO ₂ , SO ₂ , NH ₃ , HNO ₃ , CH ₃ OH, CFCs	Juillet 2004 Toujours actif mais couverture horizontale limitée
MIPAS/ENVISAT ESA	FTS OPD : 20 cm – 8 cm	Limbe Global 6-100 km	H ₂ O, CO ₂ , CH ₄ , N ₂ O, O ₃ , CO, CFC-11, CFC-12, ClO, ClONO ₂ , OCIO, HNO ₃ , C ₂ H ₆ , SF ₆ , NO ₂ , NO, NH ₃ , OCS, SO ₂ ,...	Mars 2002- Avril 2012
ACE/SCISAT CSA	FTS OPD : 25 cm	Occultation solaire Principalement hautes latitudes 6-100 km	H ₂ O, CO ₂ , CH ₄ , N ₂ O, O ₃ , CO, CFC-11, CFC-12, ClONO ₂ , HCl, HF, HNO ₃ , NO ₂ , NO, N ₂ O ₅ , CCL ₃ F, CCl ₂ F ₂ ,...	Août 2003 Toujours actif
IASI/METOP EUMETSAT/CNES	FTS OPD : 2 cm	Nadir + balayage 12 x 12 km 4 pixels 0-30 km	cf. Table 2.2	IASI-A Octobre 2006-Toujour actif IASI-B Septembre 2012-Toujours actif IASI-C Lancement prévu en 2018

1.2.1 MAPS

L'instrument MAPS est un analyseur à corrélation par filtres gazeux (Gaz Filter Correlation, cf. Annexe B). Il a volé quatre fois à bord de la navette spatiale: en novembre 1981 en tant que première charge scientifique à bord de la station, en octobre 1984 ainsi qu'en avril et octobre 1994. MAPS mesure les distributions de CO dans la basse atmosphère (de 3 à 10 km), pour les latitudes comprises entre -57° et 57° de latitude (-38° et 38° de latitude pour la mission de 1981). Ces premières observations ont montré de fortes différences dans les tropiques et l'hémisphère nord en fonction de la latitude mais aussi de la longitude (Fig. 1.9(a)). Elles ont révélé d'importantes émissions de CO lors des feux de biomasse, spécialement en Afrique. Elles ont également confirmé le gradient entre les hémisphères nord et sud, qui avait déjà été découvert par un spectromètre embarqué sur bateau (Malkov et al., 1976).

1.2.2 IMG/ADEOS

L'interféromètre IMG (Interferometric Monitor for Greenhouse gases) a été lancé en tant qu'élément de la charge utile du satellite japonais ADEOS (Advanced Earth Observing

Satellite) en août 1996. La plate-forme ADEOS a cessé de transmettre en juin 1997, suite à une panne de courant dans son panneau solaire. IMG était le premier sondeur troposphérique infrarouge permettant la mesure simultanée depuis l'espace d'une série de gaz traces qui ont un impact sur la chimie et le climat (Kobayashi et al., 1999). Il a permis les premières études de restitution de la colonne ou du profil d'ozone (Turquety et al., 2002) et de CO (Hadjilazaro et al., 1999 ; Clerbaux et al., 1999 ; Barret et al., 2005) provenant d'un instrument nadir à haute résolution dans l'infrarouge.

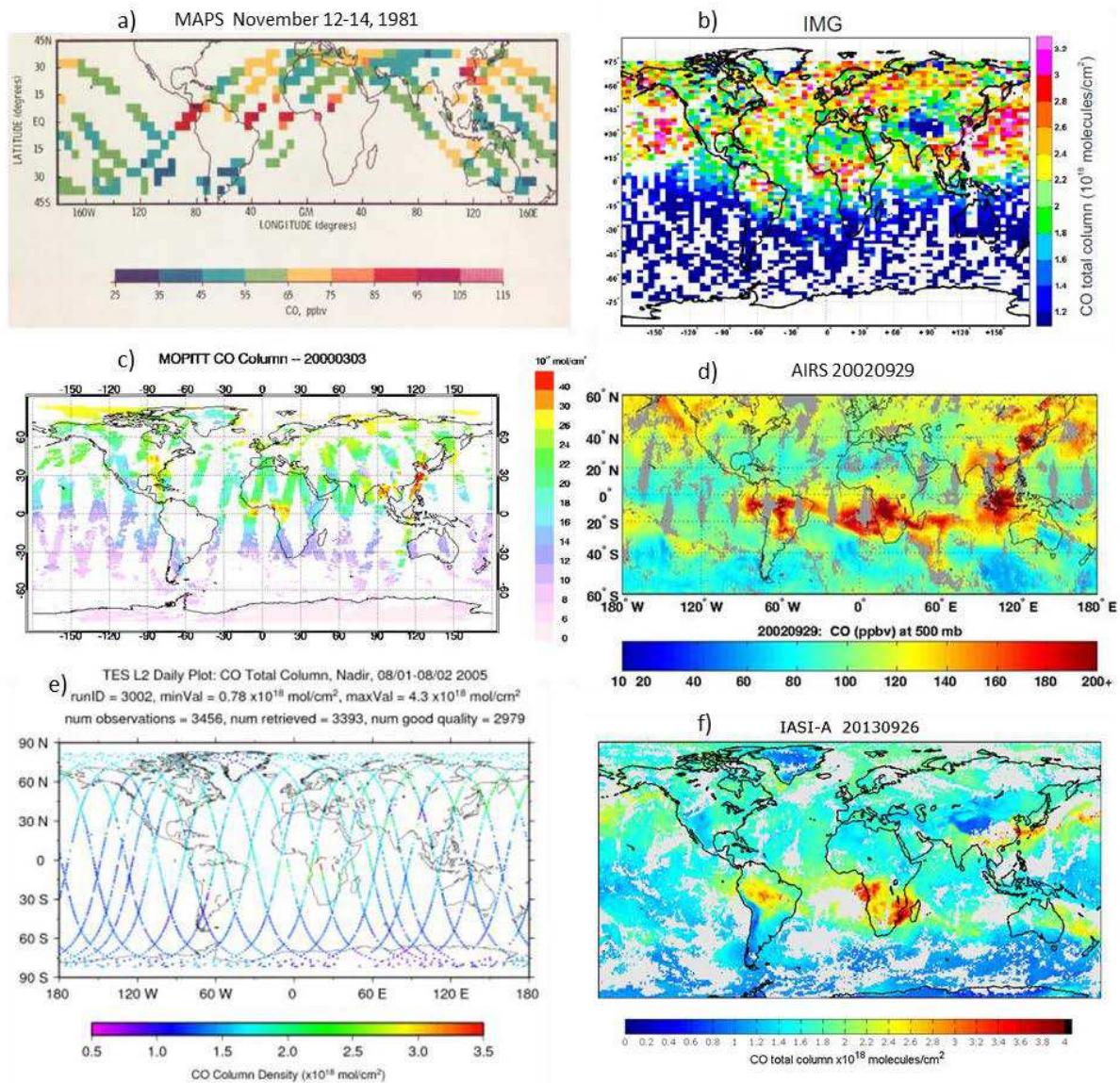


Fig. 1.9 – (a) Première carte de rapport de mélange de CO pour les hautes pressions observé par MAPS (a) les 12, 13 et 14 novembre 1981 (Reichle et al., 1986). Colonnes totales de CO vues par IMG (b) entre le 1er et le 10 avril 1997 (Barret et al., 2005). Et exemples de distributions journalières de CO vues par MOPITT (c), AIRS (d), TES (e) et IASI (f).

IMG était un interféromètre à transformation de Fourier qui a enregistré l'émission thermique du système Terre-atmosphère entre 600 et 3030 cm^{-1} , avec une différence de chemin optique (OPD) maximale de 10 cm. ADEOS était sur une orbite héliosynchrone qui croisait l'équateur à 10h30, heure locale. L'instrument assurait 14.25 orbites par jour avec des séries de six mesures successives séparées par 86 km (toutes les 10 s) le long de la trace. Le pixel était de 8 km \times 8 km, dans trois bandes spectrales, correspondant à trois détecteurs différents et trois pixels géographiquement adjacents. En raison du flux considérable de données, le mode opérationnel d'IMG consistait en 4 jours de fonctionnement suivis d'une halte de 10 jours, excepté pour une période spécifique du 1 au 10 avril 1997 pour laquelle 10 jours consécutifs de données sont disponibles (Fig. 1.9(b)).

1.2.3 MOPITT/TERRA

L'instrument MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere), développé par l'Agence Spatiale Canadienne et la NASA, a été lancé à bord du satellite EOS Terra en décembre 1999 et est devenu opérationnel en mars 2000. Il est destiné à fournir prioritairement des concentrations de CO et de CH₄ dans la troposphère, afin de déterminer les sources d'émissions de ces polluants primaires et de suivre l'évolution spatio-temporelle des panaches de pollution. MOPITT fonctionne en visée au nadir. La technique de mesure exploite la radiométrie par corrélation de gaz (cf. Annexe B). Pour mesurer le CO, MOPITT utilise le rayonnement infrarouge terrestre à 4.7 μm environ: canaux 1 et 5 (cellules à modulation de longueur) et canaux 3 et 7 (cellules à modulation de pression); ou le rayonnement solaire à 2.3 μm environ (canaux 2 et 6). Soit un total de six canaux sensibles au CO. Cependant, depuis mai 2001, il ne reste que 2 canaux opérationnels dans la bande de l'infrarouge (canaux 5 et 7), l'instrument ayant perdu un de ses deux systèmes de refroidissement. Le satellite Terra a une orbite quasi-circulaire et héliosynchrone, avec une inclinaison approximative de 98.2° et un passage à l'équateur à 10h30, heure locale. MOPITT couvre toutes les latitudes avec une taille de pixel de 22 km x 22 km et une période de revisite de trois jours (Fig. 1.9(c)).

Avec des données depuis 2000, les produits CO MOPITT sont largement utilisés dans la communauté. Les produits ont été améliorés avec le temps. La version 6 est maintenant

disponible pour l'ensemble de la période (mais pas encore validée). Depuis 2011, les luminances dans le proche infrarouge ont été exploitées et deux nouveaux produits CO sont disponibles en plus du produit TIR (thermal-infrared) : le NIR¹² (near-infrared) et un produit combiné TIR+NIR¹² (Deeter et al., 2013). Ces différents produits sont disponibles depuis le début de la mission MOPITT. Pour citer quelques exemples, le CO MOPITT est utilisé pour contraindre des modèles, établir des tendances, valider d'autres produits, améliorer des inventaires d'émissions, etc. Des exemples sont présentés dans la section 4.3. La liste des publications peut être vue à l'adresse : <http://www2.acd.ucar.edu/mopitt/publications>.

1.2.4 AIRS/AQUA

L'instrument AIRS (Atmospheric Infrared Sounder) est un sondeur infrarouge lancé en mai 2002, à bord de la plate-forme AQUA, avec deux sondeurs micro-ondes opérationnels (Aumann et al., 2003). Il a pour objectif d'observer l'eau, les cycles énergétiques, la variation du climat ainsi que la réponse du climat à l'augmentation des gaz à effet de serre. Il a été conçu pour réaliser des cartes 3D de température de l'air et de la surface, de vapeur d'eau et des propriétés nuageuses. Il s'agit d'un spectromètre à réseaux mesurant dans l'infrarouge de 3.74 à 15.4 μm avec un pouvoir de résolution PR=1200. Les données des trois instruments sont analysées en même temps pour filtrer les nuages et avoir un profil de température et d'humidité avec une grande précision : 1 K et 20% respectivement dans la troposphère. En plus de profils précis de température et d'humidité, AIRS peut mesurer l'ozone, le CO (Fig. 1.9(d)) et parfois le CO₂ et le CH₄. AIRS fournit une couverture globale de la Terre en un jour avec une résolution horizontale de 13.5 km au nadir.

Les produits CO AIRS ont notamment servi à étudier des variabilités sur le long terme (Warner et al., 2013a), la pollution en Arctique (Fisher et al., 2010), etc. Ils sont associés avec d'autres produits afin d'élaborer des produits combinés : avec TES et MLS (Warner et al., 2013b) ou encore avec MOPITT et SCIAMACHY (Kopacz et al., 2010). Ils permettent également la validation d'autres produits.

¹² Dans la nomenclature généralement rencontrée dans l'observation de la Terre, la région NIR est la région comprise entre 1 et 0.75 μm (par exemple la bande A de O₂ à 0.765 μm) et donc la région de 2.3 μm utilisée par MOPITT en flux solaire réfléchi devrait s'appeler SWIR (Short Wave InfraRed) comme c'est la convention pour les Sentinelles (S5P et S5).

1.2.5 TES/AURA

L'instrument TES (Tropospheric Emission Spectrometer) a été lancé en juillet 2004 sur la plate-forme AURA (Beer, 2006). TES est un spectromètre à transformation de Fourier qui possède à la fois une visée au nadir et une visée au limbe. Il a une haute résolution spectrale. Il mesure dans l'infrarouge de 3.2 à 15.4 μm avec un échantillonnage spectral de 0.0592 cm^{-1} au nadir et 0.0148 cm^{-1} au limbe. La résolution verticale au limbe est de 2.3 km et la résolution horizontale au nadir est de 5.3 x 8.3 km. Les espèces mesurées sont : H_2O , O_3 , CO (Fig. 1.9(e)), CO_2 , CH_4 , NO, N_2O , SO_2 , NH_3 , HNO_3 , CH_3OH , CFCs, etc. La couverture globale de la Terre est réalisée en 26 heures (16 orbites).

L'instrument TES fonctionne encore aujourd'hui mais il est seulement activé au-dessus de certaines régions afin de l'« économiser ». Comme les produits MOPITT et AIRS, il est combiné avec d'autres produits pour certaines études : avec MLS dans Luo et al. (2013) ou encore utilisé lors d'exercices de validation.

1.2.6 MIPAS/Envisat

L'instrument MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) a été lancé en mars 2002 à bord de la plate-forme Envisat (Fischer et al., 2008). Il s'agit d'un spectromètre à transformation de Fourier qui mesure l'émission atmosphérique dans l'infrarouge thermique au limbe de 4.15 à 14.6 μm avec un échantillonnage spectral de 0.025 cm^{-1} . MIPAS permet de mesurer jusqu'à une vingtaine d'espèces de la haute troposphère à la thermosphère (de 5 à 160 km) avec une couverture globale réalisée en trois jours.

MIPAS a surtout permis d'étudier le CO en émission dans la haute stratosphère et la mésosphère de jour (Funke et al., 2009). Il ne fonctionne plus depuis avril 2012.

1.2.7 ACE-FTS/SCISAT-1

La mission ACE (Atmospheric Chemistry Experiment) fut lancée par l'Agence Spatiale Canadienne sur le satellite SCISAT le 12 août 2003. Le but principal de la mission est l'étude

de la chimie et de la dynamique qui contrôlent la distribution de l’ozone dans la stratosphère et la haute troposphère, avec un intérêt particulier pour la région Arctique. Le concept de ACE est similaire à celui d’ATMOS, une expérience NASA qui a volé quatre fois sur la navette spatiale (entre 1985 et 1994). Le domaine d’altitude sondé s’étend de la haute troposphère à la thermosphère (vers 100 km), et les espèces mesurées sont le CO, l’ozone, les familles HO_x, NO_x, ClO_x, et les composés fluorés (Bernath et al., 2005 ; Boone et al., 2005 ; Walker et al., 2005).

L’instrument est un spectromètre à transformation de Fourier haute résolution (0.02 cm⁻¹, correspondant à une longueur maximale de différence de chemin optique de 25 cm), qui enregistre les spectres atmosphériques dans la région spectrale 750-4400 cm⁻¹ (de 2 à 13 μm) en occultation solaire. Une orbite inclinée à 74° combinée avec une altitude de vol de 650 km a été choisie afin que ACE ait une bonne couverture aux latitudes élevées. En orbite, ACE observe 15 levers et 15 couchers du soleil par jour. Pendant le lever et le coucher du soleil, les spectres atmosphériques, qui contiennent l’information sur différentes couches atmosphériques, sont enregistrés et leur analyse fournit des profils des constituants atmosphériques avec une résolution verticale d’environ 3-4 km, du sommet des nuages jusqu’à 105 km environ. Grâce à son excellent rapport signal sur bruit de 200-300 sur la quasi-totalité de sa gamme spectrale ainsi que son pas de temps de 2 s, ACE-FTS fournit des mesures très précises et très résolues verticalement. Cependant, son mode d’occultation solaire limite sa résolution horizontale. Dans le chapitre 3 de ce manuscrit, je présenterai des travaux de validation des données CO de ACE-FTS.

En août 2013, SCISAT a célébré son 10^{ème} anniversaire en orbite et ACE-FTS est toujours actif. Ces dernières années, le CO de ACE-FTS a été étudié dans la stratosphère et la mésosphère (Forkman et al., 2012 ; Hoffmann et al., 2011).

En conclusion citons l’instrument **CrIS** (Cross-track Infrared Sounder), spectromètre à transformation de Fourier lancé (après IASI) le 8 octobre 2011. Il fait partie de la mission NPP Suomi (National Polar-orbiting Partnership), un partenariat entre la NASA et la NOAA¹³. L’objectif de CrIS est de fournir des profils de température et d’humidité afin d’améliorer les prévisions météorologiques. Certaines espèces chimiques dont le CO sont

¹³ National Oceanic and Atmospheric Administration

également restituées (Gambacorta et al., 2013). Dans la région spectrale du CO, les performances de CrIS sont moins bonnes que celles de IASI.

Chapitre 2: Observations IASI et problème inverse

2.1 IASI

L'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) est un spectromètre à transformation de Fourier embarqué à bord de la plate-forme météorologique européenne MetOp (Meteorological Operational satellite programme). Il a été conçu pour mesurer les spectres du système Terre-atmosphère dans l'infrarouge thermique en visée au nadir, avec un balayage perpendiculaire à la trace. Il a été développé conjointement par le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) et Eumetsat (European organization for the exploitation of meteorological satellites) pour mesurer des paramètres météorologiques, de manière opérationnelle dans la troposphère et la basse stratosphère.

Le CNES a été en charge de la conception de l'instrument, qui a commencé en 1998. Il est responsable du développement du logiciel de traitement de données (Data Processing Software) ainsi que du centre d'expertise technique à Toulouse (TEC) où sont suivies les performances et la calibration de l'instrument IASI. L'ESA a été chargée du lancement de l'instrument. Eumetsat est responsable de la plate-forme ainsi que du traitement des données, de leur distribution de manière opérationnelle aux utilisateurs ainsi que de leur archivage. Depuis juin 2007, les données sont mises à disposition en quasi temps réel à travers le système de dissémination (EumetCast) qui utilise les satellites de télécommunication géostationnaires à usage commercial pour transmettre des données à une vaste communauté d'utilisateurs.

Afin d'améliorer les prévisions météorologiques, IASI¹⁴ mesure la température et l'humidité, avec un très haut niveau de précision (1 K pour la température et 10% pour l'humidité). En plus des objectifs météorologiques, IASI a également été conçu pour mesurer toute une série de gaz traces atmosphériques tels que le monoxyde de carbone, mais aussi l'ozone, la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone, l'acide nitrique ou encore le méthane. Ces mesures sont effectuées à l'échelle globale pour l'étude de l'effet de serre ou de la pollution atmosphérique.

¹⁴ Cf. IASI Science Plan, rédigé par C. Camy-Peyret et J. Eyre (1998)

D'autres instruments se trouvent également à bord de MetOp (Fig. 2.1) et peuvent être utilisés en combinaison avec IASI. Parmi ces instruments, citons l'imageur AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer) qui permet de caractériser la couverture nuageuse, la température de surface et les caractéristiques de la surface, et le spectromètre UV-VIS GOME-2 (Global Ozone Monitoring Experiment) qui mesure des profils d'ozone ainsi que des colonnes totales de dioxyde d'azote, de dioxyde de soufre ou encore de monoxyde de brome. Les données AVHRR colocalisées avec les champs de vue IASI permettent la caractérisation des nuages présents et la quantification de l'hétérogénéité de la scène pour la correction de la réponse spectrale de IASI. La colocalisation des observations AVHRR et IASI est réalisée à l'aide d'observations de l'imageur IIS (Integrated Imaging Subsystem) associé à IASI.

Trois instruments IASI ont été construits pour trois lancements successifs. Le premier modèle a été lancé le 19 octobre 2006 à bord de MetOp-A, depuis la base de Baïkonour (Kazakhstan) avec une fusée Soyouz. Le second modèle a été lancé le 17 septembre 2012 à bord de MetOp-B. Le lancement de MetOp-C est prévu pour 2018.

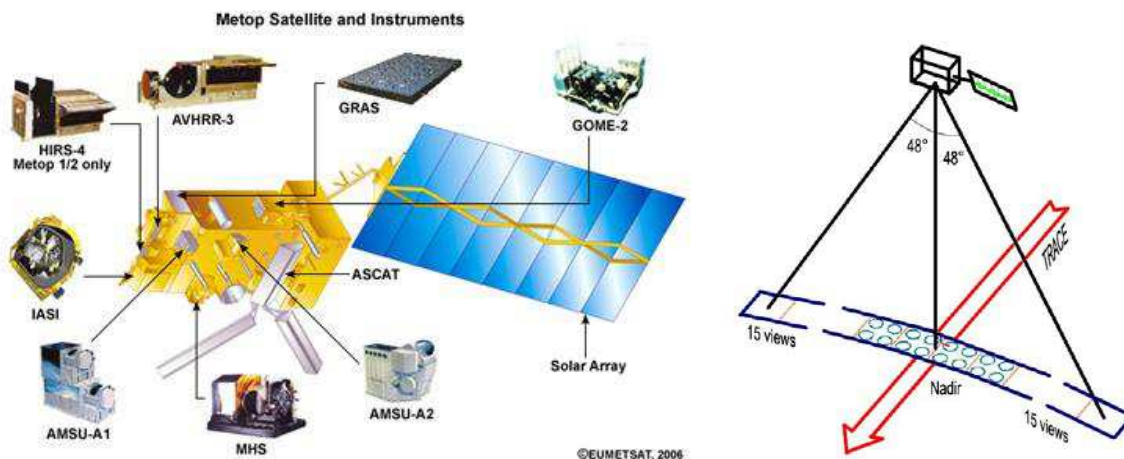


Fig. 2.1 - A gauche : configuration de la plate-forme MetOp avec IASI et les autres instruments à bord. A droite : Schéma du balayage de IASI, perpendiculairement à la trace du satellite (Clerbaux et al., 2009).

2.1.1 Géométrie d'observation

IASI observe l'atmosphère à partir d'une orbite polaire héliosynchrone à une altitude d'environ 817 km. La mesure au nadir est complétée par un balayage perpendiculaire à la trace du satellite. Trente acquisitions sont effectuées le long de la ligne de visée et de manière symétrique par rapport au nadir avec un angle variant de -48.2° à $+48.2^\circ$. La longueur au sol du balayage est d'environ 2200 km. Le champ de vue de l'instrument (IFOV pour Instrumental Field of View) est constitué de 2×2 pixels circulaires hors axe de 12 km de diamètre pour une scène au nadir (Fig. 2.1). Ces quatre pixels sont inscrits dans un carré de 50 km x 50 km en projection au sol. Une séquence complète de visée (30 scènes d'acquisition) dure 8 s. Le miroir à balayage permet de viser la même scène pendant le temps d'acquisition. En plus des 30 visées au sol, la séquence de 8 s inclut aussi des visées vers les cibles de calibration ainsi que le retour à la position de départ.

Avec son mode de visée en balayage et son orbite héliosynchrone, IASI fournit une couverture globale (95.5%) bi-journalière. L'instrument effectue 14 révolutions par jour (101 minutes par orbite environ). Ses heures de passage à l'équateur sont 9h30 et 21h30, heure locale.

2.1.2 Spécifications techniques

IASI est basé sur la télédétection infrarouge, travaillant dans la gamme spectrale de 645 cm^{-1} à 2760 cm^{-1} ($15.5 - 3.62 \text{ }\mu\text{m}$) (Table 2.1) avec un échantillonnage constant de 0.25 cm^{-1} . Le domaine spectral a été choisi afin de couvrir la bande du CO_2 avec la branche Q autour de $15 \text{ }\mu\text{m}$ (666 cm^{-1} , utilisée pour les restitutions des profils de température), la bande de l'ozone autour de $9.6 \text{ }\mu\text{m}$ ($\sim 1000 \text{ cm}^{-1}$), la bande de la vapeur d'eau, celle du CO, ainsi que celle du méthane. Ce domaine contient également la région où la lumière solaire réfléchie commence à apporter sa contribution (à partir de 2000 cm^{-1}). En outre, il est possible de restituer les propriétés des surfaces, des nuages, et de mesurer certains constituants qui absorbent faiblement, à partir des fenêtres atmosphériques.

Table 2.1 - Caractéristiques du satellite MetOp et de l'instrument IASI (Clerbaux et al., 2009).

Metop A	Launched on October 19, 2006
Altitude	~817 km
Orbit	Polar sun-synchronous
Inclination	98.7° to the equator
Local time	~09:30, descending orbit
Time for one orbit	101 min
Repeat cycle	29 days (412 orbits)
IASI	Fourier transform spectrometer
Size and weight	1.7 m ³ , 236 kg
Spectral range	645 to 2760 cm ⁻¹
Spectral resolution	0.3–0.5 cm ⁻¹ (0.5 cm ⁻¹ apodized)
Radiometric noise	<0.1–0.2 K (650–1750 cm ⁻¹)
(Ne ΔT at 280 K)	0.2–0.4 K (1750–2500 cm ⁻¹)
Scan type	Step and dwell
Field of view	50 km (3.33°) at nadir, with 4 simultaneous pixels of 12 km
Full swath width	~2200 km ($\pm 48.3^\circ$), 120 pixels
Global Earth coverage	2 times per day
Data rate	1.5 Mbps (after onboard processing), 120 radiance spectra every 8 s ~1 300 000 observations per day
Lifetime	5 years

Le domaine spectral a été divisé en trois bandes (645–1210 cm⁻¹, 1210–2000 cm⁻¹, 2000–2760 cm⁻¹), avec un détecteur spécifique à chacune des bandes afin d'optimiser les performances de IASI. Les caractéristiques spectrales de l'instrument sont déterminées par la résolution spectrale et par la précision radiométrique. Cette précision est spécifiée en termes d'écart de température équivalent au bruit NEDT (Noise Equivalent Temperature Difference), pour une température de référence donnée de 280 K (Fig. 2.2). Cela inclut toutes les contributions au bruit (détecteurs, amplificateurs, convertisseurs analogique-numérique, traitement) et toutes les sources d'erreur qui ne résultent pas d'un biais (erreurs dues au mouvement du champ de vue, fluctuations de la calibration de la longueur d'onde, fluctuations de la calibration radiométrique, etc.). La différence de chemin optique maximale de IASI est de 2 cm, ce qui est l'équivalent d'une résolution spectrale de 0.5 cm⁻¹ après apodisation. Les spectres mesurés par l'instrument IASI sont d'une bonne qualité radiométrique, puisque les performances de IASI sont meilleures que celles estimées avant le lancement de l'instrument et ce, d'un facteur 2 dans plusieurs gammes spectrales.

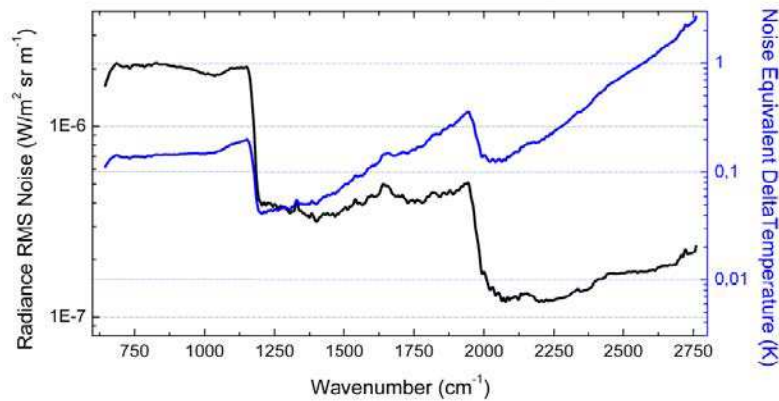


Fig. 2.2 - Bruit radiométrique de IASI établi à partir d'un jeu de spectres représentatifs, mesurés au-dessus d'une large gamme de latitudes, d'après Clerbaux et al. (2009). Les valeurs sont exprimées en radiance ($\text{W}/(\text{m}^2.\text{sr}.\text{m}^{-1})$) (noir) et sont converties en différence de température équivalente (K) (bleu) pour une température de référence de 280 K.

Afin de corriger la réponse instrumentale (réduire l'amplitude des oscillations), les produits standards IASI sont apodisés par une fonction gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de 0.5 cm^{-1} qui correspond à la résolution spectrale après apodisation.

La chaîne de traitement IASI permet de générer des spectres atmosphériques calibrés et apodisés à partir des interférogrammes mesurés. Un premier traitement est effectué à bord du satellite et permet de réduire la quantité de données d'un facteur 30, de corriger les défauts de linéarité présents lors de la détection, de calculer la transformée de Fourier inverse et enfin d'effectuer une calibration radiométrique sur les spectres obtenus qui constituent les données de niveau 0. Ces dernières incluent donc les spectres pré-calibrés, les images non calibrées correspondantes, les images de calibration, les données de vérification et les données auxiliaires nécessaires pour les traitements ultérieurs. Ces traitements sont effectués au niveau du segment sol (environ 3 h après acquisition). Il existe trois niveaux dans la chaîne de traitement :

- niveau 1a : Il s'agit des spectres calibrés non apodisés et les images correspondantes. Cette étape du traitement comprend le décodage des données, une post-calibration radiométrique, une calibration spectrale, l'enregistrement commun des données IASI et AVHRR via les images IASI, la géolocalisation et la datation.
- niveau 1b : Il correspond au niveau 1a ré-échantillonné.

– niveau 1c : Il s’agit des spectres de niveau 1b apodisés pour obtenir une fonction de réponse spectrale de l’instrument nominale. Ce niveau inclut aussi une analyse des radiances AVHRR sur les pixels IASI.

Ce sont ces luminances de niveau 1c qui sont distribuées de manière opérationnelle via le système de dissémination de données EumetCast. Un certain nombre de variables géophysiques (profils de température et d’humidité, concentrations des gaz traces, propriétés des surfaces et des nuages, etc.) appelées niveau 2 peuvent être déduites à partir de l’inversion des données de niveau 1. EumetCast distribue les produits de niveau 2 tels que les profils de température et d’humidité ainsi que les propriétés des surfaces et des nuages depuis septembre 2007 (Schlüssel et al., 2005), mais également les colonnes totales et partielles de gaz traces (ozone, monoxyde de carbone, méthane, dioxyde de carbone, dioxyde d’azote) depuis mars 2008 (August et al., 2012). La Table 2.2 résume les différents produits géophysiques de niveau 2 qui ont été obtenus à partir des mesures IASI par le groupe LATMOS-ULB. D’autres groupes travaillent à l’exploitation des données IASI et la liste de leurs publications peut être vue à l’adresse : http://smc.cnes.fr/IASI/Fr/A_publications.htm. La Fig. 2.3 issue de Clerbaux and Crevoisier (2013) montre des exemples de distributions globales pour un certain nombre d’espèces.

Table 2.2 - Composés atmosphériques restitués à partir des mesures IASI par le groupe LATMOS-ULB, applications et utilisateurs, ainsi que les publications associées.

Composé	Description	Distribution	Distribution future	Utilisateurs
Composition atmosphérique				
CO	Depuis octobre 2007, systématique et quasi temps réel (NRT), échelle globale	Via Ether ¹⁵	Sera bientôt (juin 2014) distribué via EumetCast, et stockage sur Ether (remplace le produit actuel)	MACC II; Scientifiques (85 personnes inscrites via Ether)
<i>Fortems-Cheney et al., ACP (2009) ; George et al., ACP (2009) ; Pommier et al., ACP (2010) ; Fortems-Cheney et al., JGR (2011) ; Sodemann et al., ACP (2011) ; Tereszchuk et al., ACP (2011) ; Yurganov et al., ACP (2011) ; Klonecki et al., ACP (2012) ; Kertzenmacher et al., AMT (2012) ; De Wachter et al., AMT (2012) ; Té et al., J. Atm. Oce. Tech. (2012) ; Krysztofiak et al., ACP (2012) ; Huijnen et al., ACP (2012) ; Worden et al., ACP (2013) ; Stremme et al., ACP (2013) ; Inness et al., ACP (2013) ; Stein et al., ACPD (2014)</i>				
O₃	Depuis janvier 2008, systématique et NRT, échelle globale	Demandes individuelles, via ftp	EumetCast en 2015, et stockage sur Ether prévu	Scientifiques ; CCI/ESA ozone à partir de 2014
<i>Boynard et al., ACP (2009) ; Keim et al., ACP (2009) ; Massart et al., ACP (2009) ; Anton et al., Remote Sens of Env. (2011) ; Scannell et al., AMT (2012) ; Parrington et al., ACP (2012) ; Dufour et al., AMT (2012) ; Pommier et al., ACP (2012) ; Gazeaux et al., AMT (2013) ; Safieddine et al., (2013)</i>				
SO₂	Produit « pollution » différent du produit volcan	En mode recherche		
<i>Clarisse et al., GRL (2011a)</i>				
CH₄	Echelle globale Problèmes pour enlever H ₂ O	En mode recherche		
<i>Razavi et al., ACP (2009)</i>				
HNO₃	Echelle globale, depuis 2009, systématique et NRT, échelle globale		EumetCast, au plus tard en décembre 2016, et stockage systématique sur Ether prévu	Scientifiques
<i>Wespes et al., ACP (2009) ; Wespes et al., ACP (2012)</i>				
Ammoniac	Echelle globale	Deux ans de données disponibles (2009 et 2011)	Sur Ether en 2014	Scientifiques ; Projet EU FTP7 ECLAIRE
<i>Clarisse et al., Nature Geo (2009) ; Clarisse et al., JGR (2010a) ; Heald et al., ACP (2012) ; Ginoux et al., ACP (2012) ; Sutton et al., Phil Trans. Air Soc London B (2013) ; Van Damme et al., ACPD (2013)</i>				
Methanol, Acide formique	Echelle globale, Produit pas validé	Un an de données disponible (2009)		Scientifiques
<i>Razavi et al., ACP (2011) ; Stavrakou et al., ACP (2011) ; Stavrakou et al., Nature Geo. (2012) ; Wells et al., ACP (2012)</i>				
Aérosols	Echelle globale	En mode recherche		CCI/ESA aerosols en 2014
<i>Clarisse et al., Appl. Optics (2010b) ; Clarisse et al., ACP (2013a)</i>				
Isotopes H₂O	HDO, Zones ciblées	En mode recherche, demande des capacités de calcul supplémentaires pour traitement à l'échelle globale		
<i>Herbin et al., ACP (2009) ; Lacour et al., ACP (2012) ; Pommier et al., AMT (2013)</i>				
Evènements exceptionnels				
Volcans	SO ₂ , H ₂ S, acide sulfurique, cendres	Alertes disponibles via web ; http://sacs.aeronomie.be/index.php	SO ₂ sur Ether en 2014	Alertes VAACS Projet ESA SACS, Projet EU FP7 Evoss Scientifiques
<i>Rix et al., IEEE (2009) ; Karagulian et al., JGR (2010) ; Campion et al., J.volcan and Geo Res (2010) ; Clarisse et al., GRL (2010c) ; Haywood et al., JGR (2010) ; Clarisse et al., GRL (2011b) ; Clerbaux et al., La météorologie (2011) ; Clarisse et al., AMT (2012) ; Martinez-Alonso et al., GRL (2012) ; Newman, JGR (2012) ; Theys et al., ACP (2013) ; Jégou et al., ACP (2013) ; Boichu et al., ACP (2013) ; Clarisse et al., ACPD (2013b) ; Brenot et al., Nat. Hazards Earth Syst. Sci. Discuss. (2013).</i>				
Feux	HCN, C ₂ H ₂ , acide acétique, etc.	En mode recherche		
<i>Coheur et al., ACP (2009) ; Turquety et al., ACP (2009) ; Clerbaux et al., Cptes R Geo (2010) ; Clarisse et al., GRL (2011c) ; Duflot et al., AMT (2013) ; R'Honi et al., ACP (2013) ; Krol et al., ACP (2013) ; Griffin et al., ACP (2013) ; Kononov et al., ACPD (2014)</i>				

¹⁵ La production est faite au LATMOS

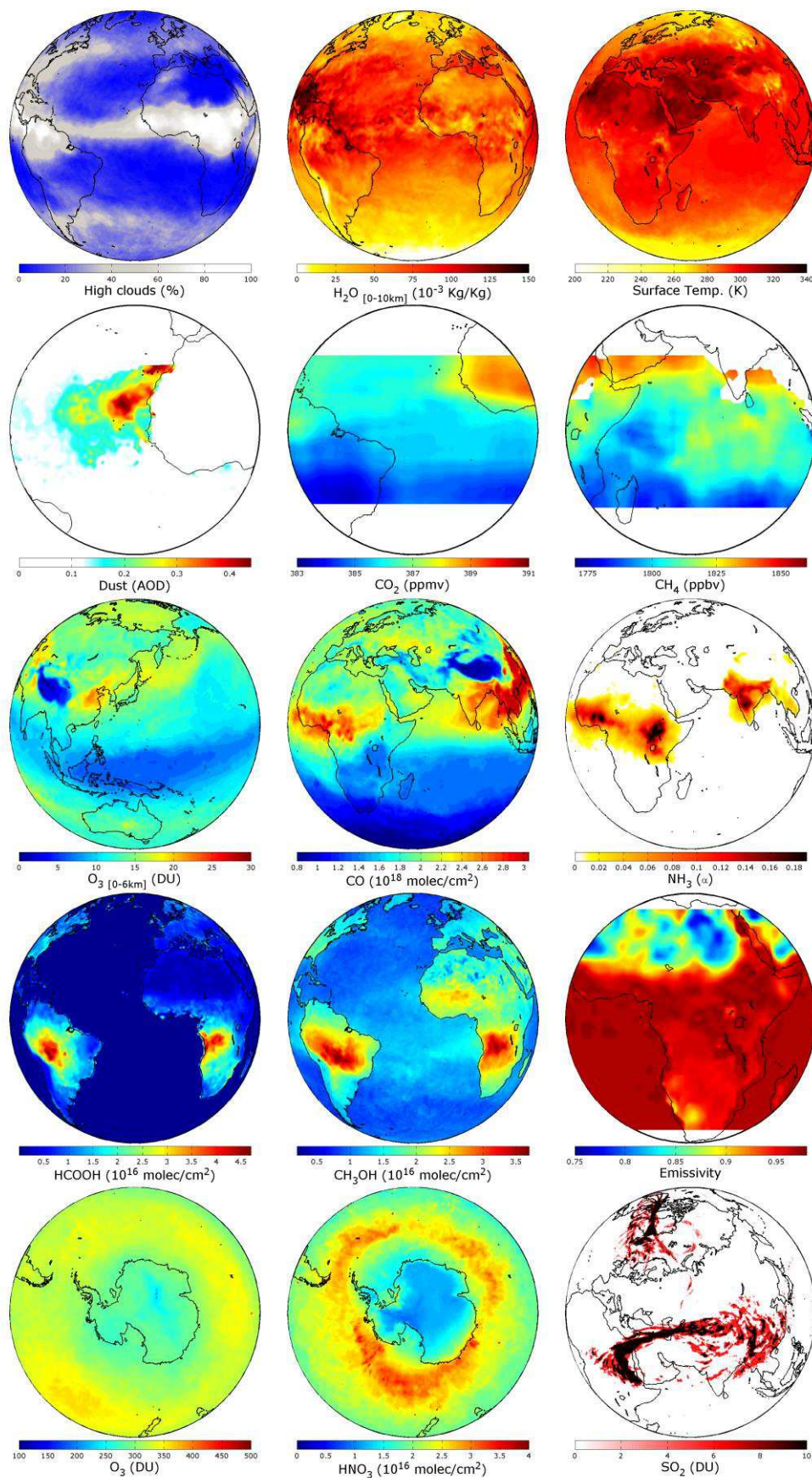


Fig. 2.3 - Exemples de distributions de différentes espèces vues par IASI.

Après cette présentation de l'instrument IASI, nous allons décrire succinctement la théorie du transfert radiatif puis nous nous attacherons à présenter la méthode dite d'inversion optimale sur laquelle repose l'inversion des données satellite IASI et MOPITT dont il sera question dans cette thèse. Nous terminerons le chapitre par une description de l'algorithme de restitution rapide FORLI-CO que nous utilisons pour calculer les concentrations de CO à partir de observations IASI de niveaux 1c et 2 (température, humidité et nuages).

2.2 Eléments de transfert radiatif et inversion optimale

2.2.1 Eléments de transfert radiatif

2.2.1.1 *Le rayonnement d'un corps noir*

Tout corps, à une température supérieure à 0 K, absorbe et émet à un nombre d'onde donné, un rayonnement fonction de sa température. Un corps noir est, par définition, un corps absorbant toutes les radiations qu'il reçoit. Son rayonnement (luminance spectrale) monochromatique observé dans un certain angle solide ($W/(cm^2.sr.cm^{-1})$) est exprimé selon l'équation de Planck, comme une fonction de sa température et du nombre d'onde $\tilde{\nu}$:

$$B_{\tilde{\nu}}(T) = \frac{2h\tilde{\nu}^3 c^2}{\exp\left[\frac{h\tilde{\nu}c}{kT_s}\right] - 1} \quad \text{Eq. 2.1}$$

avec h , la constante de Planck ($6.63 \times 10^{-34} J.s$), c , la vitesse de la lumière dans le vide ($2.99792 \times 10^8 m/s$) et k , la constante de Boltzmann ($1.38 \times 10^{-23} J/K$). La luminance spectrale, au nombre d'onde $\tilde{\nu}$, est définie comme la quantité d'énergie traversant un volume unitaire par unité de temps et d'intervalle de nombre d'onde allant de $\tilde{\nu}$ à $\tilde{\nu} + d\tilde{\nu}$.

La Fig. 2.4 présente les courbes de corps noir $B_{\tilde{\nu}}(T)$ en fonction du nombre d'onde pour différentes températures de surface. La courbe à 6000 K est représentative du spectre d'émission du Soleil et celle à 300 K du spectre d'émission de la Terre. Les corps réels (par

exemple la Terre et le Soleil) ne se comportent pas comme des corps noirs parfaits, on les appelle des corps gris. La déviation de leur luminance par rapport à celle d'un corps noir à la même température s'exprime au travers de l'émissivité de surface $\varepsilon_{S,\tilde{\nu}}$:

$$L_{\tilde{\nu}}(T) = \varepsilon_{S,\tilde{\nu}} B_{\tilde{\nu}}(T), \quad 0 \leq \varepsilon_{S,\tilde{\nu}} \leq 1 \quad \text{Eq. 2.2}$$

Elle représente le rapport de la luminance spectrale du corps considéré à une température T sur celle du corps noir à la même température ; elle est donc toujours inférieure ou égale à 1.

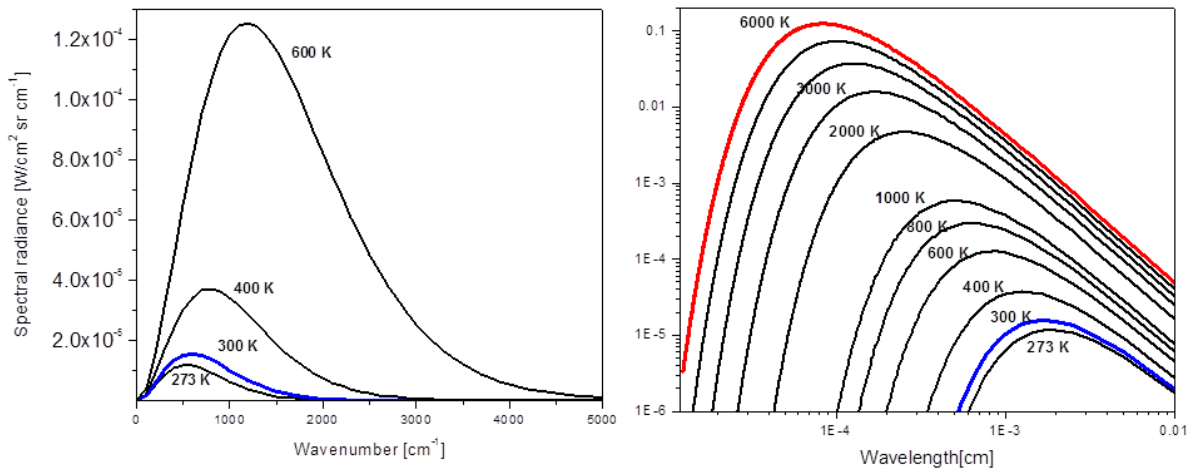


Fig. 2.4 - Luminance spectrale d'un corps noir, par unité de nombre d'onde (à gauche) et par unité de longueur d'onde (à droite), à différentes températures dont celle de la Terre (en bleu) et celle du Soleil (en rouge).

L'atmosphère terrestre n'a pas une température uniforme. Cependant, si nous considérons une petite portion de l'atmosphère à une température locale T , cette portion est dite en équilibre thermodynamique local¹⁶. Elle répond à l'équation de Planck et émet un rayonnement $\varepsilon_{\tilde{\nu}} B_{\tilde{\nu}}(T)$ dans toutes les directions, où $\varepsilon_{\tilde{\nu}}$ représente l'émissivité spectrale du gaz considéré.

2.2.1.2 L'équation du transfert radiatif dans l'infrarouge

L'équation du transfert radiatif rend compte de tous les processus pouvant affecter le rayonnement lors de sa traversée de l'atmosphère. Elle permet de calculer la luminance

¹⁶ Dans la troposphère et la basse stratosphère, couches de l'atmosphère où les concentrations de CO sont les plus élevées. Les études présentées dans cette thèse s'intéressent à ces couches atmosphériques.

spectrale (L dont l'unité est le $W/(cm^2.sr.cm^{-1})$) pour un nombre d'onde $\tilde{\nu}$. En considérant un élément de chemin optique ds dans l'atmosphère, le bilan des processus affectant les photons d'une longueur d'onde donnée traversant un élément de volume s'écrit :

$$\frac{dL_{\tilde{\nu}}}{ds} = -k_{\tilde{\nu}}L_{\tilde{\nu}} + J_{\tilde{\nu}} \quad \text{Eq. 2.3}$$

Le premier terme représente l'absorption dans l'élément ds . $k_{\tilde{\nu}}$ représente le coefficient d'absorption spectrale du gaz considéré au nombre d'onde $\tilde{\nu}$. $J_{\tilde{\nu}}$ représente la fonction source dans ds . Il comprend un terme de diffusion $J_{\tilde{\nu}}^{diff}$ et un terme d'émission thermique

$$J_{\tilde{\nu}}^{emis} : J_{\tilde{\nu}} = J_{\tilde{\nu}}^{diff} + J_{\tilde{\nu}}^{emis} \quad \text{Eq. 2.4}$$

Dans la majeure partie du domaine spectral de l'infrarouge thermique, la contribution du rayonnement solaire peut être négligée (elle devient cependant importante à partir de 2700 cm^{-1}) ; la source principale de rayonnement est donc la surface de la Terre. La diffusion par les molécules ou par les aérosols peut être également négligée, les processus prépondérants étant l'émission de la surface de la Terre et l'absorption et l'émission par les constituants gazeux de l'atmosphère, les aérosols et les nuages. La fonction source peut alors s'écrire :

$$J_{\tilde{\nu}} \approx J_{\tilde{\nu}}^{emis} = k_{\tilde{\nu}}B_{\tilde{\nu}}(T) \quad \text{Eq. 2.5}$$

L'équation 2.3 du transfert radiatif s'écrit :

$$\frac{1}{k_{\tilde{\nu}}} \frac{dL_{\tilde{\nu}}}{ds} = -L_{\tilde{\nu}}(s) + B_{\tilde{\nu}}(T_s) \quad \text{Eq. 2.6}$$

avec T_s la température du gaz au point s . L'épaisseur optique du milieu entre les points s_1 et s_2 est définie par :

$$\tau(s_1, s_2) = \int_{s_1}^{s_2} k_{\tilde{\nu}}(s') ds' \quad \text{Eq. 2.7}$$

On a alors après simplification et intégration de l'équation 2.3 entre 0 (la surface de la Terre) et s_r la position du récepteur visant au nadir :

$$L_{\tilde{\nu}}(s_r) = \left[L_{\tilde{\nu}}(0) + (1 - \varepsilon_{s_r, \tilde{\nu}}) \int_{s_r}^0 k_{\tilde{\nu}}(s) B_{\tilde{\nu}}(T_s) e^{-\tau(s, s_r)} ds \right] e^{-\tau(0, s_r)} + \int_0^{s_r} k_{\tilde{\nu}}(s) B_{\tilde{\nu}}(T_s) e^{-\tau(s, s_r)} ds \quad \text{Eq. 2.8}$$

Le premier terme de cette équation correspond à l'émission de la surface terrestre. Le second à la contribution du flux descendant réfléchi, et le troisième terme correspond à l'émission thermique le long du chemin optique.

La transmittance $\eta(s_1, s_2)$ exprimant la fraction de signal qui traverse la couche $[s_1, s_2]$ est donnée par : $\eta(s_1, s_2) = e^{-\tau(s_1, s_2)}$ Eq. 2.9

L'énergie est donc atténuée sur sa trajectoire entre 0 et s_r par un facteur donné par la transmittance.

2.2.2 Le signal associé au CO dans l'infrarouge thermique

Le signal mesuré par un sondeur spatial résulte de l'interaction entre le rayonnement émis par les corps gris (Terre ou Soleil) et l'atmosphère terrestre. La plupart des molécules qui jouent un rôle dans l'étude de la chimie atmosphérique et du climat possèdent des bandes d'absorption ro-vibrationnelles dans la région spectrale de l'infrarouge thermique. Le spectre¹⁷ mesuré contient ainsi les signatures spectrales de différents composants atmosphériques, organisées en bandes de raies. Les raies spectrales renferment de l'information sur la concentration des composés atmosphériques et sur leur distribution verticale. Il est par conséquent possible de restituer de l'information sur un profil de concentration si la mesure est suffisamment résolue spectralement. Cette opération nécessite l'utilisation de techniques dites de restitution.

La Fig. 2.5 représente un spectre IASI ainsi qu'une partie zoomée sur la région spectrale où le CO absorbe (bande 1-0, centrée vers 2143 cm^{-1}). Sur ce spectre zoomé, nous avons superposé la position des raies d'absorption théoriques du CO pour les branches R et P (provenant des

¹⁷ Le spectre du flux lumineux émis par la terre et transmis par l'atmosphère peut s'exprimer en luminance absolue (e.g. $\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-1})$) ou température de brillance (e.g. K) ou encore être présenté sous forme de transmittance (lorsqu'il est divisé par une référence comme le spectre d'émission du corps noir équivalent à la surface de la terre).

bases de données spectroscopiques GEISA¹⁸ et HITRAN¹⁹), représentées par des barres verticales rouges qui indiquent les positions des raies.

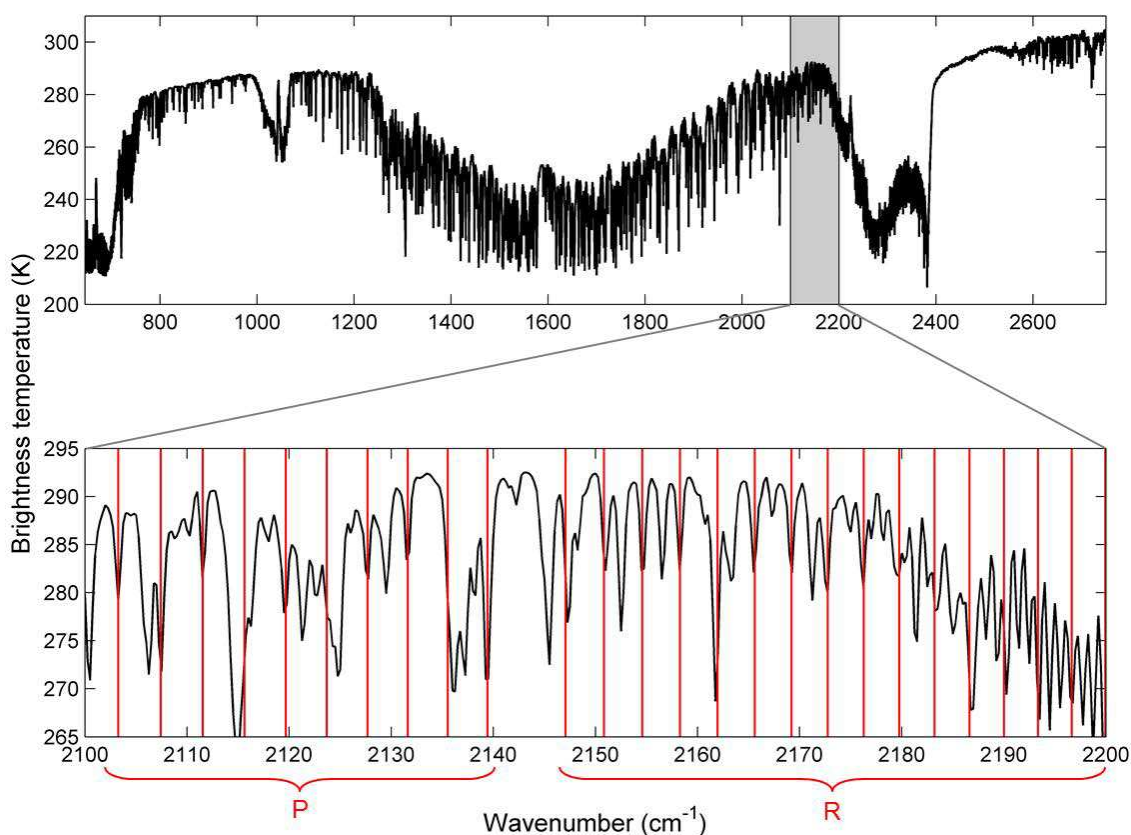


Fig. 2.5 - Exemple de spectre IASI et zoom sur la région spectrale où le CO absorbe. Les barres rouges représentent la position des raies d'absorption théoriques du CO provenant des bases de données spectroscopiques GEISA et HITRAN.

La Fig. 2.6 représente les structures d'absorptions des différentes espèces chimiques absorbant dans la même région spectrale que le CO : la vapeur d'eau (H_2O), le dioxyde de carbone (CO_2), l'ozone (O_3) et l'oxyde nitreux (N_2O). Les raies d'absorption du CO (branches R et P) sont représentées en rouge. Afin d'obtenir des concentrations de CO en inversant le spectre, il convient d'étudier la partie du spectre où le CO absorbe et où il y a peu d'absorption d'autres espèces chimiques. Dans l'algorithme FORLI-CO utilisé pour inverser les mesures de IASI (section 2.3), c'est la région comprise entre 2143 et 2181.25 cm^{-1} qui est choisie. Cette région contient en effet les raies les plus intenses de la branche R et correspond à une zone de faible absorption pour le CO_2 , le N_2O et l'ozone.

¹⁸ Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques (Jacquinet-Husson et al., 2011).

¹⁹ High-Resolution TRANsmission molecular absorption database (Rothman et al., 2013).

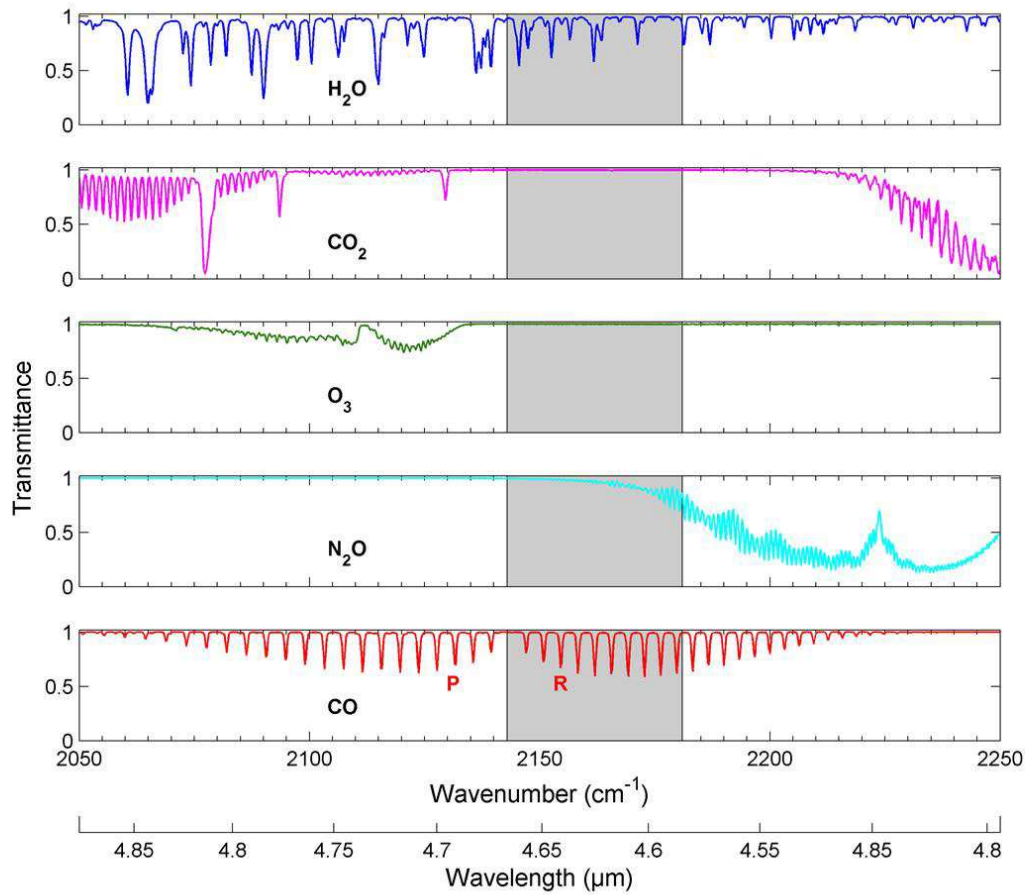


Fig. 2.6 - Raies d'absorption des principales molécules absorbant dans la région spectrale du CO. La zone grisée correspond à la région spectrale 2143-2181.25 cm⁻¹, utilisée par l'algorithme d'inversion FORLI-CO qui inverse les spectres mesurés par IASI (section 2.3).

Lors du processus d'inversion, l'algorithme va simuler des spectres de manière itérative, en partant d'un spectre *a priori*, jusqu'à atteindre un spectre (calculé) qui soit le plus proche possible selon des critères définis à l'avance du spectre mesuré.

Sur la Fig. 2.7, on peut voir un spectre mesuré (en noir) et un spectre calculé (en rouge) lors du processus d'inversion. La différence entre les deux est appelé « résidu » et peut être vue en bleu. Dans le cas présenté, le résidu est compris entre \pm le bruit radiométrique de l'instrument (délimité par les lignes horizontales grises dans la partie basse de l'image).

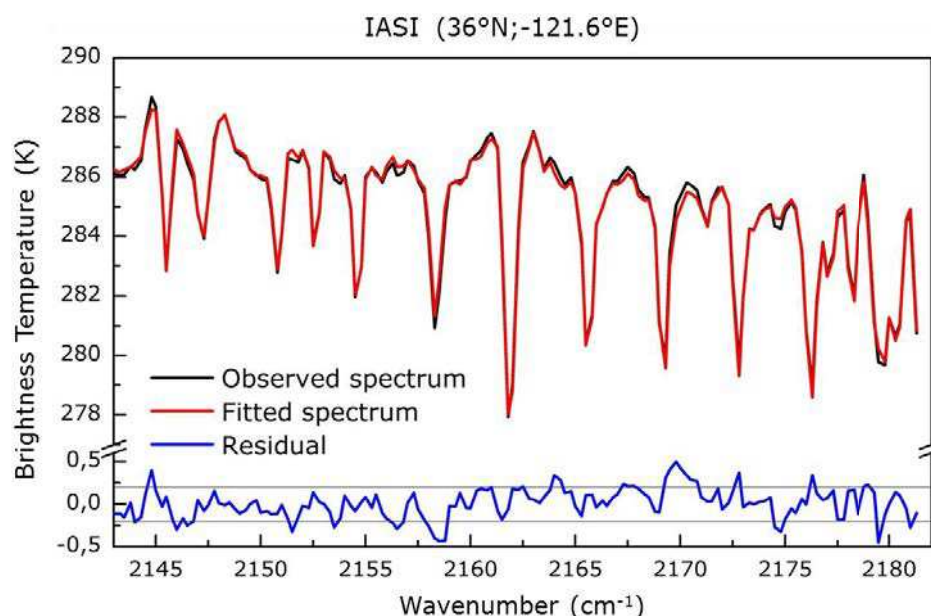


Fig. 2.7 - Spectre IASI enregistré près de Los Angeles (USA), le 1^{er} août 2008, à 9h30 heure locale. Le résidu (en bleu), différence entre le spectre mesuré (en noir) et le spectre calculé (en rouge) est dans la fourchette du bruit radiométrique (0.2 K, cf. section 2.1.2).

Dans la suite, nous allons détailler la méthode de restitution par estimation optimale qui est associée à un code de transfert radiatif pour restituer les concentrations de CO à partir des observations IASI et MOPITT.

2.2.3 Restitution des concentrations de CO : la méthode d'estimation optimale

Nous allons présenter ici la technique d'inversion qui repose sur la méthode d'estimation optimale (OEM pour Optimal Estimation Method en anglais) décrite dans Rodgers (2000). Les algorithmes d'inversion des mesures de IASI et MOPITT, dont nous allons parler plus loin, reposent sur cette méthode. Celle-ci considère notamment la contribution d'un état *a priori* qui représente la meilleure connaissance *a priori* de la concentration de l'espèce mesurée. C'est la méthode la plus couramment utilisée dans le cas de l'inversion de spectres en visée au nadir qui contiennent une mesure intégrée des concentrations des constituants atmosphériques.

2.2.3.1 Problème direct et fonction de poids

Définissons le vecteur d'état et le vecteur de mesure. Le vecteur d'état, x , est un vecteur constitué des n éléments qui représentent les quantités à déterminer, par exemple les concentrations en monoxyde de carbone. Le vecteur de mesure, y , est constitué des m éléments mesurés, les luminances composant le spectre dans notre cas. Ce vecteur est une fonction du vecteur d'état mais aussi du bruit instrumental représenté par le vecteur ε . La relation entre le vecteur d'état et le vecteur de mesure s'écrit :

$$y = F(x, b) + \varepsilon \quad \text{Eq. 2.10}$$

où $F(x, b)$ représente le modèle direct, soit la fonction directe du transfert radiatif. Le vecteur b contient les n_b paramètres du transfert radiatif, autres que ceux du vecteur d'état à déterminer, et qui sont les paramètres spectroscopiques, les propriétés radiatives de la surface de la Terre (température et émissivité de surface), les paramètres définissant l'état de l'atmosphère (profil de température, de pression atmosphérique et des concentrations des autres constituants atmosphériques qui absorbent dans la même région spectrale) et les caractéristiques de l'instrument (fonction de réponse spectrale, résolution, échantillonnage). Notons que ces n paramètres ne sont pas nécessairement parfaitement connus de l'utilisateur et une estimation de ces paramètres est alors utilisée.

La linéarisation du problème direct autour d'un état de référence défini par x_a et \hat{b} permet de caractériser l'observation. Les vecteurs x_a et \hat{b} représentent respectivement la meilleure estimation du vecteur d'état (l'état *a priori*) et la meilleure estimation de b . Nous obtenons alors :

$$y - F(x_a, \hat{b}) = \frac{\partial F(x_a, \hat{b})}{\partial x} (x - x_a) + \frac{\partial F(x_a, \hat{b})}{\partial b} (b - \hat{b}) + \varepsilon, \quad \text{Eq. 2.11}$$

$$\text{soit } y = F(x_a, \hat{b}) + K(x - x_a) + K_b(b - \hat{b}) + \varepsilon \quad \text{Eq. 2.12}$$

$$\text{où } K = \frac{\partial F(x_a, \hat{b})}{\partial x} \text{ et } K_b = \frac{\partial F(x_a, \hat{b})}{\partial b}.$$

La matrice $K(m \times n)$ appelée matrice des fonctions de poids ou matrice des jacobiens représente la sensibilité du modèle direct à l'état réel x . La matrice $K_b(m \times n_b)$ représente la sensibilité du modèle direct aux paramètres fixés du modèle. L'étude des fonctions de poids permet de vérifier que les spectres mesurés contiennent effectivement de l'information sur la concentration à restituer dans les différentes couches de l'atmosphère. Elle ne renseigne cependant pas de manière précise sur la quantité d'information contenue dans la mesure, ni sur la résolution verticale atteinte sur le profil de concentration. Pour cela, une analyse plus approfondie du contenu en information doit être effectuée (cf. section suivante). Les fonctions de poids permettent également d'optimiser la région spectrale à considérer pour l'inversion et renseignent sur le domaine d'altitude qui contribue le plus à la mesure.

2.2.3.2 Problème inverse et fonctions de lissage

Le problème inverse décrit comment le profil de concentrations est obtenu à partir de la mesure spectrale. Le problème est mal posé et admet plusieurs solutions, il faut donc le contraindre. Il consiste à calculer \hat{x} , une estimation de l'état réel recherché x , à partir de la mesure y et de l'estimation \hat{b} des paramètres du modèle, b , contrainte par les hypothèses *a priori* :

$$\hat{x} = R(y, \hat{b}, x_a) = R(F(x, b) + \varepsilon, \hat{b}, x_a) \quad \text{Eq. 2.13}$$

où R est la fonction du modèle inverse. Elle représente une fonction de transfert entre l'état réel x et l'état restitué \hat{x} , tenant compte de l'instrument et de la méthode d'inversion. Le vecteur x_a représente la meilleure estimation *a priori* de l'état x . Il ne contribue pas à la fonction de modèle direct mais il affecte l'inversion. Il est construit par exemple à partir d'une climatologie et de mesures indépendantes. La matrice de variance-covariance associée à x_a est notée S_a (Fig. 2.8).

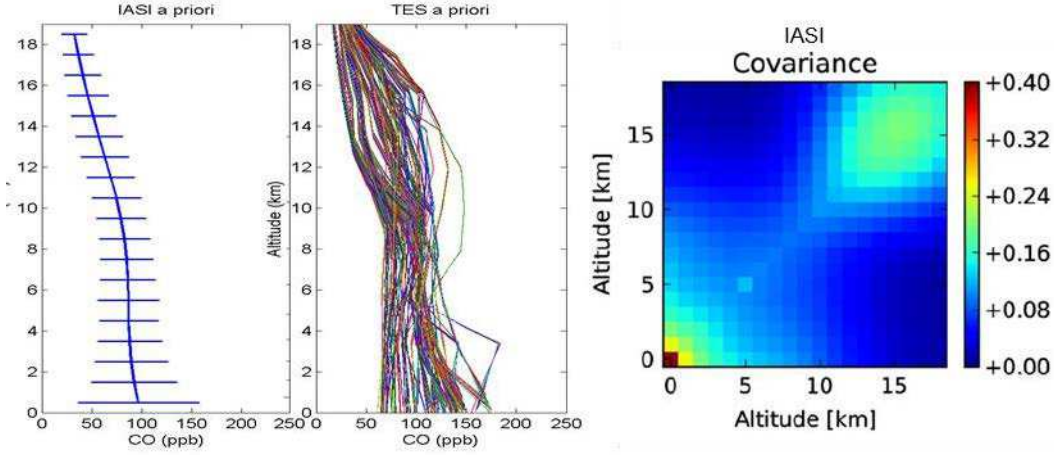


Fig. 2.8 - Exemples de profils de CO *a priori* utilisé dans les inversions des produits IASI (un profil unique à gauche) et TES (section 1.2.5) (au milieu) dont le profil *a priori* varie en fonction du temps et de la géolocalisation (ici sont représentés les différents profils *a priori* pour le mois d'août) (Extrait de George et al. (2009)). Les barres horizontales pour IASI représentent les écarts types relatifs au profil *a priori*, ce sont les éléments diagonaux de la matrice de variance-covariance S_a (à droite) associée au profil *a priori* IASI (extrait de Hurtmans et al. (2012)). S_a représente la variabilité autorisée autour du profil *a priori* lors de l'inversion ; elle est exprimée en fraction de variabilité au carré : une valeur de 0.01 correspond à une variabilité de 10% ; une valeur de 0.3965 (comme pour la première couche de l'atmosphère entre 0 et 1 km) correspond à une variabilité de 63% environ.

Tenant compte de l'équation 2.12, la linéarisation du modèle inverse autour des états x_a et \hat{b} , par rapport à y , permet de caractériser l'inversion et nous donne:

$$\hat{x} = R \left[F(x_a, \hat{b}) + K(x - x_a) + K_b(b - \hat{b}) + \varepsilon, \hat{b}, x_a \right] \quad \text{Eq. 2.14}$$

$$\hat{x} = R \left[F(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a \right] + G_y \left[K(x - x_a) + K_b(b - \hat{b}) + \varepsilon \right] \quad \text{Eq. 2.15}$$

où $G_y = \frac{\partial R}{\partial y}$ représente la sensibilité de l'inversion à la mesure y , appelée matrice des gains.

Chaque colonne de $G_y (n \times m)$ représente la contribution d'un élément de y au profil inversé.

Après réarrangement des termes, le modèle inverse linéarisé peut s'écrire :

$$\begin{aligned}\hat{x} - x_a = & R \left[F(x_a, \hat{b}), \hat{b}, x_a \right] - x_a \dots \\ & + A(x - x_a) \dots \\ & + G_y \mathcal{E}_y\end{aligned}\tag{Eq. 2.16}$$

où le premier terme représente le biais ou l'erreur systématique éventuelle associée aux modèles direct et inverse. Il s'agit de l'erreur résultant de l'inversion d'un état connu x_a en utilisant une mesure simulée sans bruit correspondant à cet état. Pour une méthode d'inversion parfaite, ce terme doit être nul.

Le second terme représente la manière dont la quantité recherchée est dégradée par le système d'observation (caractéristiques instrumentales et méthode d'inversion) :

$$G_y [K(x - x_a)] = A(x - x_a)\tag{Eq. 2.17}$$

Cette relation définit la matrice $A(n \times n) = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x}$ dont les lignes représentent les fonctions de lissage (ou averaging kernels). Chaque élément du profil inversé \hat{x} résulte donc du produit du profil réel x par la fonction de lissage qui lui est associée. Pour un système d'observation idéal où tous les éléments du système mesuré participeraient à la mesure, la matrice A serait une matrice identité et le profil réel pourrait alors être atteint. Dans ce cas, les fonctions de lissage sont des pics (Fig. 2.9(a)) pointant à l'altitude associée. En pratique, la résolution verticale du profil inversé est dégradée en tenant compte de la sensibilité de la mesure à certains éléments du système mesuré. Les fonctions de lissage ont donc des profils étalés dont le maximum indique l'altitude correspondant au maximum de sensibilité de la mesure et dont la largeur à mi-hauteur indique la résolution verticale du profil inversé aux différents niveaux d'altitude considérés.

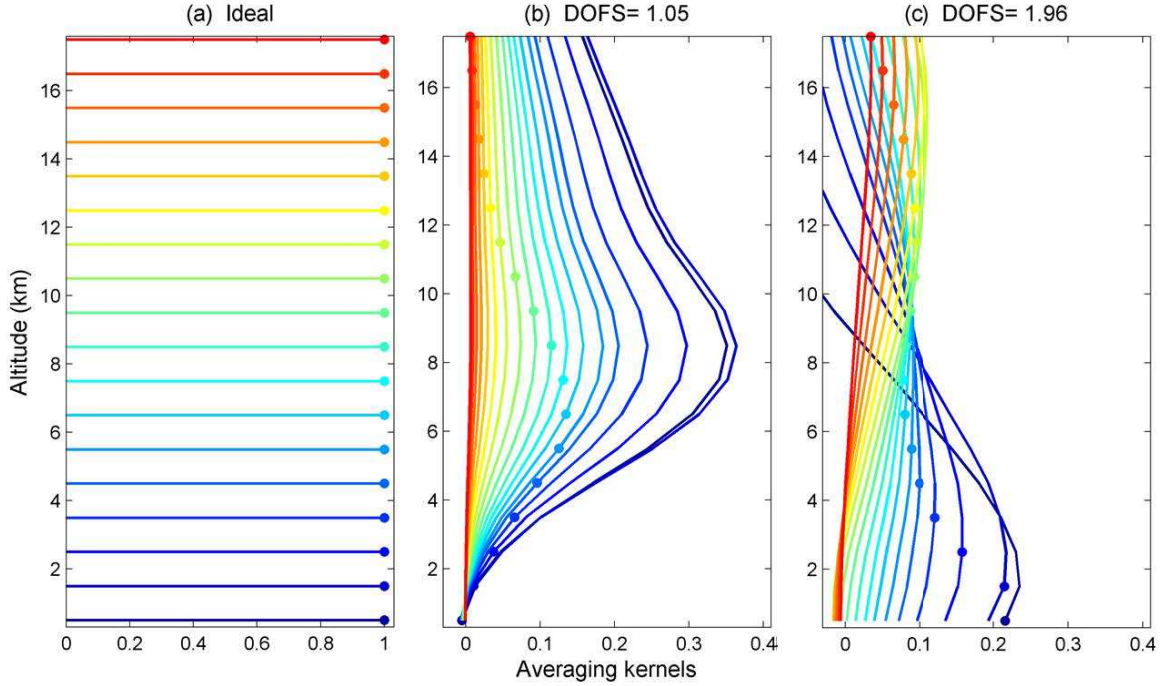


Fig. 2.9 - Fonctions de lissage (ou averaging kernels) associées respectivement à un système d'observation idéal (a), à l'inversion du CO avec FORLI, dans un cas où les DOFS sont proches de 1 (b) et dans un cas où les DOFS sont proches de 2 (c). Les points de couleurs indiquent les altitudes correspondant à chaque fonction de lissage.

Ainsi les fonctions de lissage de la Fig. 2.9(b) montrent que les concentrations du profil de CO à la surface viennent d'une information vers 8 km : les noyaux bleu foncés associés aux altitudes proches de la surface « pointent » vers 8 km. Il n'y a donc pas de sensibilité de la mesure à la surface dans ce cas et l'information à ces altitudes est donnée par le profil *a priori*. En revanche, les fonctions de lissage représentées sur la Fig. 2.9(c) montrent que les concentrations inversées pour les basses couches sont basées sur une information qui vient de la surface.

Finalement, le troisième terme de l'équation 2.16 représente l'erreur d'inversion associée aux incertitudes relatives au modèle direct : les incertitudes sur les paramètres fixés du modèle direct et sur le bruit de la mesure :

$$G_y \varepsilon_y = G_y \left[K_b (b - \hat{b}) + \varepsilon \right] \quad \text{Eq. 2.18}$$

Par conséquent, en l'absence de biais, chaque élément du profil inversé \hat{x} résulte de l'*a priori* corrigé par la pondération de la différence entre \hat{x} et x_a par A , et des incertitudes dans le modèle direct :

$$\hat{x} = x_a + A(x - x_a) + G_y \varepsilon_y = (I - A)x_a + Ax + G_y \varepsilon_y \quad \text{Eq. 2.19}$$

La mesure contient un certain nombre d'éléments indépendants d'information qui peut être déterminé à partir de paramètres de diagnostic déduits de la matrice des fonctions de lissage A (Rodgers, 2000). Le nombre de degrés de liberté associé au signal (DOFS pour Degree of Freedom for Signal ; Rodgers, 2000) est déterminé par la trace de A (Rodgers, 2000) et dépend des hypothèses *a priori* choisies.

$$d_s = \text{tr}(A) \quad \text{Eq. 2.20}$$

Dans le cas du CO, un DOFS inférieur à 1 signifie que seule la restitution d'une colonne totale a du sens tandis qu'un DOFS supérieur à 1 signifie que la résolution du profil est meilleure qu'une colonne troposphérique. Par exemple, un DOFS égal à 2 signifie que le profil possède deux couches d'information indépendantes (cf. Fig. 2.9 pour des exemples de fonctions de lissage avec les DOFS associés).

2.2.3.3 Les composantes de l'erreur sur l'inversion

D'après la linéarisation du modèle inverse et en négligeant l'erreur systématique dans le modèle direct et le modèle inverse (Eq. 2.19), l'erreur totale sur le profil inversé se décompose en trois termes :

$$\begin{aligned} \hat{x} - x = & (A - I)(x - x_a) \dots \text{erreur de lissage} \\ & + G_y K_b (b - \hat{b}) \dots \text{erreur sur les paramètres du modèle} \\ & + G_y \varepsilon \dots \text{erreur due au bruit radiométrique} \end{aligned} \quad \text{Eq. 2.21}$$

qui représentent respectivement :

- l'erreur de lissage : L'état réel étant inconnu, l'erreur de lissage ne peut être estimée que si l'on considère la statistique de cette erreur, décrite par une moyenne \bar{x} et une covariance d'un ensemble approprié d'états, qui peuvent être décrits par l'information *a priori* x_a et S_a . Si l'on choisit $\bar{x} = x_a$, la covariance associée à l'erreur de lissage s'écrit :

$$S_s = (A - I)S_a(A - I)^T \quad \text{Eq. 2.22}$$

- l'erreur sur les paramètres du modèle, c'est-à-dire l'erreur d'inversion due aux paramètres fixés du modèle direct. L'état réel des paramètres b étant également inconnu, la contribution de cette erreur ne pourra être estimée qu'en considérant la matrice de covariance associée à l'incertitude sur les paramètres du modèle, S_b , autour de \hat{b} , la meilleure estimation des paramètres. La matrice de covariance associée à cette contribution d'erreur sur l'inversion est donnée par :

$$S_p = G_y K_b S_b K_b^T G_y^T \quad \text{Eq. 2.23}$$

- l'erreur due au bruit radiométrique dont la covariance est décrite par :

$$S_m = G_y S_\varepsilon G_y^T \quad \text{Eq. 2.24}$$

avec S_ε la matrice de covariance du bruit radiométrique qui est généralement aléatoire et diagonale si les éléments du vecteur de mesure sont des mesures indépendantes.

L'analyse de chacun des termes du problème inverse linéarisé permet une caractérisation précise du contenu en information du profil inversé et de l'erreur associée à partir du calcul des matrices fondamentales K_x , G_y et A (Rodgers, 2000). Une telle analyse est importante

pour permettre l'utilisation et l'exploitation des inversions puisqu'elle renseigne sur leur résolution verticale et leur précision.

2.2.4 Lissage de profils par les fonctions de lissage

Lors d'exercices d'inter-comparaison ou de validation, les produits CO provenant de différents types d'instruments (sol, avion ou satellite) sont comparés. Cette comparaison requiert une considération spécifique des caractéristiques instrumentales et d'inversion de chaque produit. Ainsi, afin de comparer deux profils provenant d'instruments dont les résolutions verticales sont significativement différentes, le profil issu de l'instrument avec la meilleure résolution verticale sera lissé à l'aide des fonctions de lissage et des informations *a priori* du profil issu de l'instrument avec la moins bonne résolution verticale (Rodgers et Connors, 2003). La formule de lissage est la suivante :

$$x_{smoothed}^{high} = x_a^{low} + A^{low}(x_{retrieved}^{high} - x_a^{low}) \quad \text{Eq. 2.25}$$

avec $x_{retrieved}^{high}$, le profil haute résolution à lisser (par exemple un profil *in situ*, ou un profil simulé par un modèle),

$x_{smoothed}^{high}$, le profil haute résolution lissé,

A^{low} , la matrice des fonctions de lissage du profil basse résolution (par exemple un profil satellite),

et x_a^{low} , le profil *a priori* utilisé dans l'inversion du profil basse résolution.

Sur le même principe, lorsque l'on souhaite comparer les colonnes totales (et non les profils) issues d'instruments de résolutions verticales différentes, le profil issu de l'instrument avec la meilleure résolution verticale pourra être lissé avec le vecteur de la fonction de lissage (ou averaging kernel) correspondant à la colonne totale²⁰ issue de l'instrument avec la moins bonne résolution spectrale, afin d'obtenir directement une colonne haute résolution lissée (cf. Annexe A).

²⁰ La fonction de lissage correspondant à la colonne totale de CO est un vecteur calculé en faisant la somme des lignes de la matrice A . Il indique d'où vient la sensibilité de la colonne totale inversée. Des exemples sont donnés plus loin (Fig. 4.11).

2.3 FORLI-CO

Les spectres en luminance de IASI dans l'intervalle spectral entre 2143 et 2181.25 cm^{-1} sont inversés grâce à l'algorithme FORLI-CO (Fast Optimal Retrievals on Layers for IASI) développé par Daniel Hurtmans à l'Université Libre de Bruxelles (ULB). Cet algorithme est décrit en détail dans Hurtmans et al. (2012). Il a été spécifiquement développé pour répondre aux besoins opérationnels du traitement des données IASI. L'algorithme est basé sur l'OEM (cf. section 2.2.3). Le profil *a priori* de CO ainsi que la matrice de covariance associée (Fig. 2.8) ont été construits à partir d'une base de données de profils mesurés par le programme MOZAIC, des profils mesurés par l'instrument satellite ACE-FTS et des profils simulés par le modèle global LMDz-INCA²¹ (Turquety et al., 2009). FORLI-CO utilise les spectres IASI (données de niveau 1c), les profils atmosphériques de température, d'humidité et le pourcentage de couverture nuageuse IASI (données de niveau 2) ainsi que des données d'émissivité de surface. Seules les données où la couverture nuageuse est inférieure à 25% sont traitées²². FORLI-CO fournit des profils de CO en colonnes partielles sur 19 couches atmosphériques, allant de la surface jusqu'au sommet de l'atmosphère (60 km) : 18 couches de 1 km entre 0 et 18 km et une couche de 18 à 60 km. Un profil en rapport de mélange effectif est également disponible, calculé à partir du profil en colonnes partielles divisé par le profil de densité de l'air correspondant. FORLI-CO fournit également des diagnostics d'erreur, incluant une matrice *a posteriori* de variance-covariance d'erreur et une matrice de fonctions de lissage.

Notons que FORLI restitue des colonnes partielles par couche (de 1 km). En cas de représentation graphique d'un profil en rapport de mélange, la colonne partielle (correspondant à une couche) est convertie en rapport de mélange (moyen dans la couche) qui est associé à l'altitude correspondant au milieu de la couche.

²¹ Modèle de chimie-aérosols couplé à LMDz, modèle de circulation générale atmosphérique développé le LMD. INCA : INteraction avec la Chimie et les Aérosols. Le « z » est pour zoom.

²² Dans l'infrarouge, les nuages absorbent et émettent du rayonnement en fonction de leur température. Ce sont également des diffuseurs. Leur présence peut cacher une partie de la colonne atmosphérique et donc altérer l'inversion.

Chapitre 3: Le CO mesuré par la mission ACE-FTS

3.1 Introduction aux chapitres 3, 4 et 5

La suite de ce manuscrit va s'attacher à décrire les résultats de mes recherches. Le premier volet de mes recherches a concerné la validation de données de monoxyde de carbone, dérivées des mesures des satellites ACE-FTS et IASI.

Dans le cadre de la validation des données CO de ACE-FTS (Chapitre 3), j'ai manipulé un grand nombre de données provenant de différents instruments. Je me suis attachée à les comparer et à déduire des biais moyens, en prenant en compte les différentes résolutions verticales des instruments, c'est-à-dire en lissant les données les plus résolues avec les fonctions de lissage des données les moins résolues. J'ai été en contact avec les responsables des différents jeux de données. Dans l'article présenté, j'ai été en charge de toutes les comparaisons, et ai donc généré toutes les figures associées ainsi que les statistiques qui en découlent. Cathy Clerbaux s'est chargée de la rédaction.

L'étude des données IASI FORLI-CO qui font l'objet du chapitre 4 est plus poussée. L'algorithme d'inversion FORLI a été développé par Daniel Hurtmans de l'ULB avec qui l'équipe LATMOS collabore très étroitement. Nous disposons aujourd'hui d'un jeu de données de 6 ans. Dans le cadre de l'édition spéciale IASI du journal Atmospheric Chemistry and Physics (ACP), j'ai été en charge d'écrire le premier article de validation des données FORLI-CO avec des jeux de données d'autres instruments embarqués sur des satellites, sondant, comme IASI, l'atmosphère dans l'infrarouge thermique. Ce chapitre comprend également les résultats de validation qui ont été publiés suite à l'article. Les produits FORLI-CO sont utilisés par de nombreuses équipes scientifiques et je présente également dans ce chapitre des résultats publiés dans des articles dont je suis co-auteur.

Après la validation des produits CO ACT-FTS et IASI, l'autre volet de mes recherches présenté dans le chapitre 5 concerne la comparaison des données FORLI-CO IASI aux données MOPITT, afin de quantifier au mieux et de comprendre leurs différences. MOPITT fournissant des données de CO depuis 2000, et la mission IASI étant prévue jusqu'à fin 2020

environ, nous souhaitons montrer que IASI est un bon successeur de MOPITT, notamment pour l'élaboration de tendances sur le long terme. Afin de quantifier le poids du choix des hypothèses *a priori* dans le processus d'inversion de la mesure, nous avons mené une expérience qui a consisté à faire inverser des données MOPITT avec les hypothèses *a priori* de FORLI. Ce travail a été mené en collaboration avec le NCAR (National Center for Atmospheric Research) où j'ai effectué plusieurs visites afin de mener à bien cette expérience. Les résultats de cette étude font l'objet d'un article en préparation.

3.2 Résumé long de l'article de validation des données CO de ACE-FTS

Le papier que je vais présenter a été publié en 2008 dans la revue Atmospheric Chemistry and Physics (ACP) dans le cadre d'une phase de validation des produits de l'instrument ACE-FTS avant leur première distribution au public. Il fait partie d'une édition spéciale ACE-FTS. Cathy Clerbaux et moi-même avons été chargées par le Science Team ACE-FTS de valider le produit CO v2.2. Nous l'avons comparé avec des mesures sol, ballon, avion et satellite, ce qui a nous a fait interagir avec un grand nombre de personnes, comme l'atteste la présence des 52 co-auteurs.

CO measurements from the ACE-FTS satellite instrument: data analysis and validation using ground-based, airborne and spaceborne observations

Clerbaux, C., George, M., Turquety, S., Walker, K. A., Barret, B., Bernath, P., Boone, C., Borsdorff, T., Cammas, J. P., Catoire, V., Coffey, M., Coheur, P.-F., Deeter, M., De Mazière, M., Drummond, J., Duchatelet, P., Dupuy, E., de Zafra, R., Eddounia, F., Edwards, D. P., Emmons, L., Funke, B., Gille, J., Griffith, D. W. T., Hannigan, J., Hase, F., Höpfner, M., Jones, N., Kagawa, A., Kasai, Y., Kramer, I., Le Flochmoën, E., Livesey, N. J., López-Puertas, M., Luo, M., Mahieu, E., Murtagh, D., Nédélec, P., Pazmino, A., Pumphrey, H., Ricaud, P., Rinsland, C. P., Robert, C., Schneider, M., Senten, C., Stiller, G., Strandberg, A., Strong, K., Sussmann, R., Thouret, V., Urban, J., and Wiacek, A.

Atmos. Chem. Phys., 8, 2569-2594, doi:10.5194/acp-8-2569-2008, 2008.

Le CO est une des espèces mesurées par le spectromètre à transformation de Fourier à bord du satellite ACE. Le mode de visée de l'instrument est une visée au limbe, par absorption. Dans cet article, les profils (de 6 à 100 km) et des colonnes partielles de CO de la version v2.2 des

produits de ACE-FTS sont validés en utilisant des jeux de données d'instruments de onze stations sol (réseau NDACC), embarqués à bord d'avions (programme MOZAIC), de ballon (SPIRALE) et sur cinq satellites (TES et MOPITT en visée au nadir, et MIPAS, MLS et SMR en visée au limbe). Cet exercice de validation couvre la période de février 2004 à décembre 2006.

Initialement prévue pour l'étude de la chimie de l'ozone aux pôles, la mission ACE fournit beaucoup de données aux hautes latitudes, où les passages sont plus fréquents. La méthode d'inversion des mesures ACE-FTS utilise un ajustement par la méthode des moindres carrés non linéaires. Dans la version v2.2 des produits CO que nous cherchons à valider, de nombreuses fenêtres spectrales ont été ajoutées dans le processus d'inversion afin d'améliorer les performances de l'instrument dans les basses altitudes.

Les profils ACE-FTS sont fournis avec un pas de 1 km (après une interpolation entre les altitudes mesurées). L'erreur d'inversion est la plus importante pour la colonne 6-12 km (1.9%). Puis elle baisse à 0.5% pour les colonnes 12-25 et 25-50 km. Pour réaugmenter à 1.1% pour les colonnes 50-80 et 80-100 km. L'erreur sur les niveaux individuels d'inversion est de 10% pour la troposphère et la stratosphère, et entre 5 et 20% pour les altitudes supérieures.

Les données de comparaison proviennent d'instruments faisant appel à différentes techniques de mesures, de méthode de sondage et de méthode d'inversion. Cependant, tous utilisent la base de données spectroscopiques HITRAN (Rothman et al., 2005). Les altitudes de mesures varient d'un instrument à l'autre, ainsi que les résolutions verticales ou encore les altitudes de sensibilité. Afin d'en tenir compte dans cet exercice de validation, les profils des instruments avec la plus haute résolution verticale ont été lissés par convolution avec les fonctions de lissage de l'instrument dont la résolution verticale est la plus basse (cf. section 2.2.4, Eq. 2.25)

Pour les stations sol, les critères de colocalisation choisis sont de 24 h et de 1000 km, afin que l'étude comporte suffisamment de données sol. En comparant les colonnes partielles (définies entre le plus bas niveau de ACE-FTS et 25 km), les différences moyennes varient entre 13 et 40%.

Pour les profils mesurés par les avions du programme MOZAIC, les critères de colocalisation sont de 24 h, 9° en latitude et 10° en longitude. La différence moyenne est de moins de 16% pour des comparaisons entre 6 et 12 km.

Concernant les mesures satellitaires avec visée au nadir, les critères de colocalisation sont de 24 h et 5° en latitude, 5° en longitude pour MOPITT et 300 km pour TES. Pour la colonne comprise entre 5.5 et 8.5 km, altitudes des maxima de sensibilité pour MOPITT et TES, l'accord avec ACE-FTS est de 10% environ, quand aucun lissage n'est appliqué. En revanche, quand les profils sont lissés, l'accord est presque parfait, avec moins de 2.2% de différence.

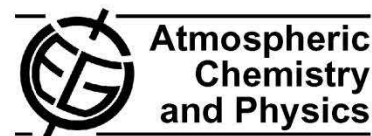
Enfin, pour les mesures satellitaires avec visée au limbe, les mesures de ACE-FTS sont plus basses que celles de MLS et SMR, pour la haute troposphère (en dessous 20 km). ACE-FTS se compare bien avec MIPAS : $\pm 26\%$ de différence pour toutes les altitudes, sauf pour la couche 38-41 km où les différences peuvent atteindre 50%. Entre 20 et 100 km, les comparaisons entre ACE-FTS et les 3 instruments satellitaires visant au limbe montrent des différences de moins de 30%, sauf pour MLS.

Cet exercice de validation a permis de dégager les incertitudes suivantes : moins de 15% dans la haute troposphère (8-12 km), moins de 30% dans la stratosphère (12-30 km) et enfin moins de 25% entre 30 et 100 km.

3.3 Article 1

En février 2014, le « ISI citation index » de cet article est de 35.

Atmos. Chem. Phys., 8, 2569–2594, 2008
 www.atmos-chem-phys.net/8/2569/2008/
 © Author(s) 2008. This work is distributed under
 the Creative Commons Attribution 3.0 License.



CO measurements from the ACE-FTS satellite instrument: data analysis and validation using ground-based, airborne and spaceborne observations

C. Clerbaux¹, M. George¹, S. Turquety¹, K. A. Walker^{2,3}, B. Barret⁴, P. Bernath^{2,5}, C. Boone², T. Borsdorff⁶, J. P. Cammas⁴, V. Catoire⁷, M. Coffey⁸, P.-F. Coheur⁹, M. Deeter⁸, M. De Mazière¹⁰, J. Drummond¹¹, P. Duchatelet¹², E. Dupuy², R. de Zafra¹³, F. Eddounia¹, D. P. Edwards⁸, L. Emmons⁸, B. Funke¹⁴, J. Gille⁸, D. W. T. Griffith¹⁵, J. Hannigan⁸, F. Hase¹⁶, M. Höpfner¹⁶, N. Jones¹⁵, A. Kagawa¹⁷, Y. Kasai¹⁸, I. Kramer¹⁶, E. Le Flochmoën⁴, N. J. Livesey¹⁹, M. López-Puertas¹⁴, M. Luo²⁰, E. Mahieu¹², D. Murtagh²¹, P. Nédélec⁴, A. Pazmino¹, H. Pumphrey²², P. Ricaud⁴, C. P. Rinsland²³, C. Robert⁷, M. Schneider¹⁶, C. Senten¹⁰, G. Stiller¹⁶, A. Strandberg²¹, K. Strong³, R. Sussmann⁶, V. Thouret⁴, J. Urban²¹, and A. Wiacek³

¹Université Paris 6, CNRS, Service d'Aéronomie/IPSL, Paris, France

²Department of Chemistry, University of Waterloo, Waterloo, Ontario, Canada N2L 3G1, Canada

³Department of Physics, University of Toronto, Toronto, Ontario, Canada M5S 1A7, Canada

⁴Laboratoire d'Aérodynamique UMR 5560, Observatoire Midi-Pyrénées, Toulouse, France

⁵Department of Chemistry, University of York, Heslington, York YO10 5DD, UK

⁶Forschungszentrum Karlsruhe, IMK-IFU, Garmisch-Partenkirchen, Germany

⁷Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement, CNRS, Université d'Orléans, Orléans, France

⁸National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, USA

⁹Spectroscopie de l'atmosphère, Chimie Quantique et Photophysique, Université Libre de Bruxelles (U.L.B.), Brussels, Belgium. P.-F. Coheur is Research associate with the FRS-F.N.R.S., Belgium

¹⁰Belgian Institute for Space Aeronomy, Brussels, Belgium

¹¹Department of Physics & Atmospheric Science, Dalhousie University, Halifax, Canada

¹²Université de Liège ULg, Institute of Astrophysics and Geophysics, Liège, Belgium

¹³Department of Physics and Astronomy, State Univ. of New York at Stony Brook, USA

¹⁴Instituto de Astrofísica, Andalucía (CSIC), Granada, Spain

¹⁵Department of Chemistry, University of Wollongong, Wollongong, New South Wales, Australia

¹⁶Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe, Germany

¹⁷Fujitsu FIP Corporation, Tokyo, Japan

¹⁸National Institute of Information and Communications Technology, Tokyo, Japan

¹⁹Microwave Atmospheric Science Team, Jet Propulsion Laboratory, CA, USA

²⁰Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California, USA

²¹Chalmers University of Technology, Göteborg, Sweden

²²School of GeoSciences, Edinburgh, Scotland

²³NASA Langley Research Center, Hampton, Virginia, USA

Received: 19 September 2007 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 30 October 2007

Revised: 6 May 2008 – Accepted: 6 May 2008 – Published: 16 May 2008



Correspondence to: C. Clerbaux
 (ccl@aero.jussieu.fr)

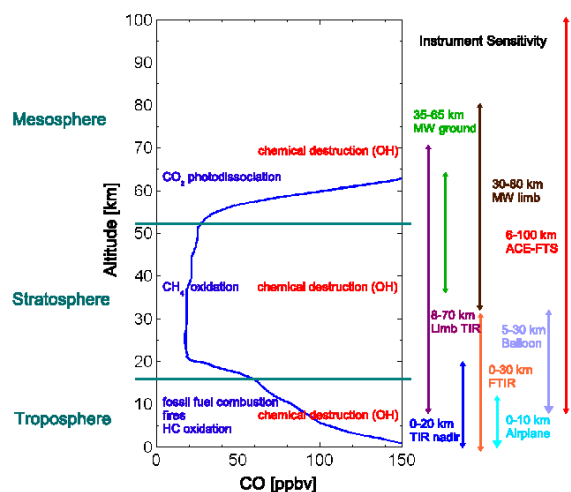


Fig. 1. Schematic plot of a standard atmospheric CO profile, with the different sources of production (blue) and destruction/sinks (red) as a function of altitude. The CO profile was constructed from averaged ACE-FTS data over China and completed with TES data over the same area below 6 km. The vertical sensitivity of each CO sounding type of instrument is also reported on the right-hand side of this plot. MW and TIR refer to millimeter-wave and thermal infrared spectral regions, respectively.

Abstract. The Atmospheric Chemistry Experiment (ACE) mission was launched in August 2003 to sound the atmosphere by solar occultation. Carbon monoxide (CO), a good tracer of pollution plumes and atmospheric dynamics, is one of the key species provided by the primary instrument, the ACE-Fourier Transform Spectrometer (ACE-FTS). This instrument performs measurements in both the CO 1-0 and 2-0 ro-vibrational bands, from which vertically resolved CO concentration profiles are retrieved, from the mid-troposphere to the thermosphere. This paper presents an updated description of the ACE-FTS version 2.2 CO data product, along with a comprehensive validation of these profiles using available observations (February 2004 to December 2006). We have compared the CO partial columns with ground-based measurements using Fourier transform infrared spectroscopy and millimeter wave radiometry, and the volume mixing ratio profiles with airborne (both high-altitude balloon flight and airplane) observations. CO satellite observations provided by nadir-looking instruments (MOPITT and TES) as well as limb-viewing remote sensors (MIPAS, SMR and MLS) were also compared with the ACE-FTS CO products. We show that the ACE-FTS measurements provide CO profiles with small retrieval errors (better than 5% from the upper troposphere to 40 km, and better than 10% above). These observations agree well with the correlative measurements, considering the rather loose coincidence criteria in some cases. Based on the validation exercise we assess the following uncertain-

ties to the ACE-FTS measurement data: better than 15% in the upper troposphere (8–12 km), than 30% in the lower stratosphere (12–30 km), and than 25% from 30 to 100 km.

1 Introduction

Carbon monoxide (CO) plays an important role in atmospheric chemistry and is one of the key species that needs to be measured globally and at different altitudes. The primary emission sources of CO are associated with combustion processes (transport, heating, industrial activities and biomass burning), along with biogenic sources and oceans. It is also produced from the oxidation of methane and non-methane hydrocarbons (see Fig. 1). At surface level, the volume mixing ratios range from a background concentration of 50 parts per billion by volume (ppbv) to excess of 700 ppbv where high emissions occur. Large uncertainties remain in the estimated strengths of both natural and anthropogenic sources. The main sink for CO is chemical destruction by reaction with the hydroxyl radical (OH). In the lower atmosphere, where CO has a lifetime of several weeks to a few months, its observation allows the characterization of both emission sources and atmospheric transport of pollution plumes (Logan, 1981). In the upper troposphere, CO can also be transported across the tropical tropopause. In the stratosphere, CO is produced by the oxidation of methane and is converted to carbon dioxide (CO₂) by reaction with OH. Above 50 km, in the mesosphere and thermosphere, photolysis of CO₂ is the main source of CO, which reaches a concentration of 5–20 parts per million by volume (ppmv) at 80 km. At these altitudes, CO is also a useful dynamical tracer which can be used to study atmospheric transport processes, and, in particular, upward transport in high latitude summer regions and downward transport in the high latitude winter regions (e.g. Solomon et al., 1985).

Several remote sensing and in situ techniques provide routine measurements to monitor the spatial and temporal changes in the concentration of atmospheric CO. The accuracy, sampling and vertical, horizontal and temporal coverage of these measurements depend on the instrument and the observation technique (e.g. ground-based, airborne, or satellite-borne) and, in the case of optical measurements, of the spectral range and resolution used. Ground-based remote sensing techniques, in particular those available from the numerous sites in the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC, formerly NDSC, see <http://www.ndacc.org>) that are equipped with Fourier Transform Infrared (FTIR) instruments, have provided long-term CO atmospheric measurements (Kurylo, 1991; Yurganov et al., 2004; 2005; Velasco et al., 2007). Airborne MOZAIC (Measurements of OZone aboard in-service Airbus airCraFt) flights provide routine monitoring of CO in the upper troposphere over large areas (Nedelec et al., 2005). Currently there

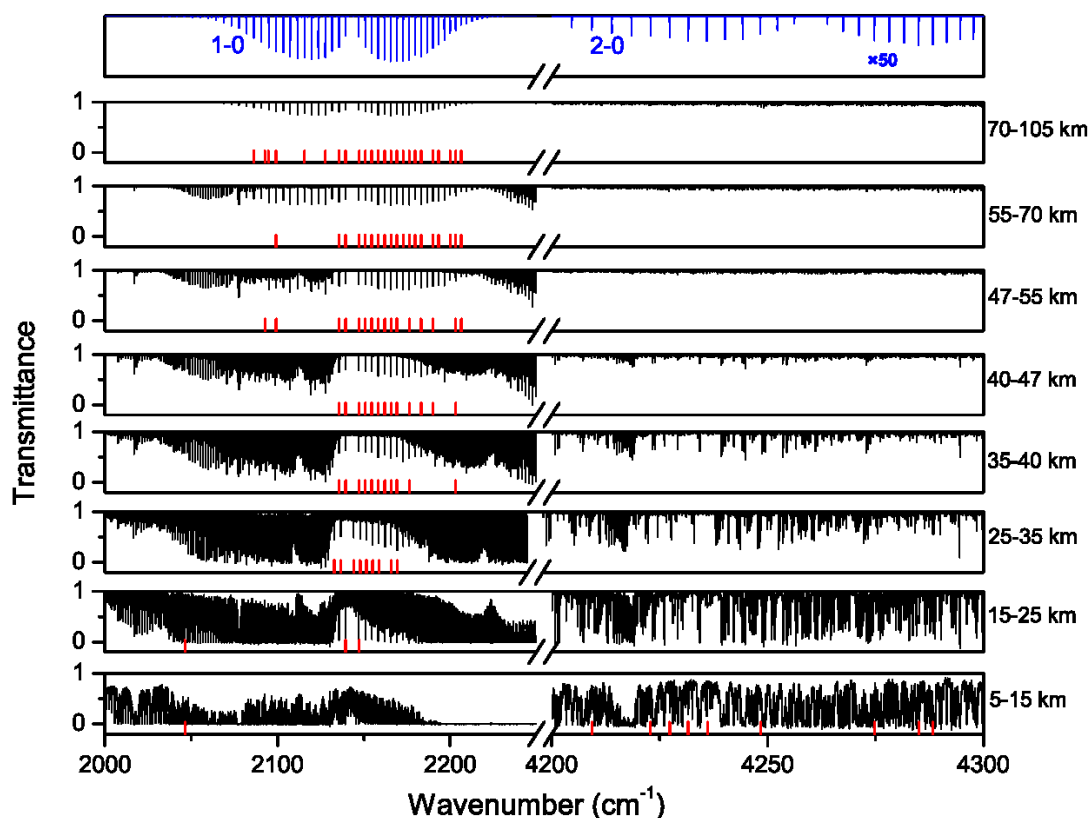


Fig. 2. Microwindows (version 2.2., red lines) used to retrieve CO vertical profiles from the ACE-FTS spectra, for a typical occultation sequence spanning from the free troposphere to the mesosphere. The numbers on the right give the approximate altitude range where the microwindows are valid. The top panel shows a simulated CO spectrum (blue), with the absorption in the 2-0 band multiplied by a factor of 50 for clarity.

are extensive CO observations from space from several nadir looking remote sensors, such as MOPITT/Terra (Edwards et al., 2004; Clerbaux et al., 2008), SCIAMACHY/Envisat (Frankenberg et al., 2005), TES/Aura (Rinsland et al., 2006a; Luo et al., 2007a), and the recently launched IASI/Metop (Turquety et al., 2004; Clerbaux et al., 2007), which are yielding a global view of the CO tropospheric distribution. Although some of them (TES, SCIAMACHY) are also able to partly sound the atmosphere using a limb geometry, their ability to retrieve vertical information is limited. From space, vertically resolved profiles can be derived from measurements using limb geometry, in emission or absorption. The currently available limb-sounders working in emission are SCIAMACHY, MIPAS/Envisat (Funke et al., 2007), which uses the mid-infrared spectral range, SMR/Odin (Murtagh et al., 2002) and MLS/Aura (Pumphrey et al., 2007), which both rely on millimeter-wave spectroscopy. In absorption the single instrument currently providing CO measurements is the infrared Atmospheric Chemistry Experiment Fourier

Transform Spectrometer (ACE-FTS) (Bernath et al., 2005). It is worth noting that, among these instruments, only the ACE-FTS is capable of sounding CO simultaneously from the mid-troposphere to the mesosphere.

Intercomparison experiments are needed to validate the CO products obtained by different remote sounding instruments (Clerbaux et al., 2002; Emmons et al., 2004; Jin et al., 2005; Sussmann and Buchwitz, 2005; Dils et al., 2006; Barret et al., 2006; Luo et al., 2007a; Pumphrey et al., 2007; Warner et al., 2007; Rinsland et al., 2008). As the ACE mission approached its first public data release, a comprehensive exercise was undertaken to validate the retrieved profiles with the other datasets available. This paper aims at validating CO partial columns and profiles with correlative independent measurements. The paper is organized as follows: First, we describe the ACE mission, the ACE-FTS instrument and the CO version 2.2 (v2.2) data product from the ACE-FTS. Second, the co-located observations provided by different ground-based, balloon, airborne and satellite

Table 1. Microwindows used for the ACE-FTS CO (main isotopologue) version 2.2 retrievals.

Center wavenumber (cm^{-1})	Microwindow width (cm^{-1})	Lower altitude (km)	Upper altitude (km)
1119.20 ^(a)	0.38	35	47
1121.45 ^(a)	0.35	5	35
2046.29	0.24	8	25
2086.37	0.40	70	105
2092.71	0.40	47	55
2094.76	0.40	70	105
2099.08	0.40	47	105
2115.63	0.35	65	105
2127.67	0.40	70	105
2135.54	0.40	25	105
2139.40	0.40	15	105
2147.18	0.35	15	105
2150.93	0.30	25	105
2154.55	0.26	27	105
2158.35	0.50	28	105
2162.02	0.35	35	105
2165.64	0.30	28	105
2169.23	0.35	30	105
2172.76	0.40	55	105
2176.35	0.30	35	105
2179.77	0.40	60	105
2183.20	0.40	40	105
2189.93	0.35	40	105
2193.30	0.35	55	105
2200.00	0.35	55	105
2203.19	0.35	35	105
2206.43	0.28	45	100
2667.85 ^(b)	0.40	5	25
4209.39	0.30	5	15
4222.88	0.40	5	15
4227.35	0.60	5	15
4231.63	0.45	5	15
4236.05	0.45	5	15
4248.35	0.35	5	15
4274.77	0.30	5	15
4285.12	0.50	5	15
4288.27	0.35	7	15

^(a) Microwindow for interferer O₃: the mixing ratio profiles of this interfering species are fitted simultaneously with the target CO profile.

^(b) Microwindow for interferer CH₄: the mixing ratio profiles of this interfering species are fitted simultaneously with the target CO profile.

instruments are outlined. Next, we discuss the comparisons between the ACE-FTS CO data and correlative observations available from March 2004 to December 2006, and, finally, we conclude with the reliability of v2.2 ACE-FTS CO data at different latitudes and altitude levels.

2 CO observations from the ACE-FTS

2.1 The ACE mission and the ACE-FTS instrument

The ACE mission (Bernath et al., 2005) on board the Canadian SCISAT-1 satellite was launched on 12 August 2003. The principal instrument of the mission, known as ACE-FTS, is a high resolution (0.02 cm^{-1} , corresponding to a maximum optical path difference of 25 cm) infrared Fourier transform spectrometer operating from 2 to 13 microns ($750\text{--}4400 \text{ cm}^{-1}$), that measures the vertical distribution of trace

Table 2. Estimated total error on the retrieved CO partial columns from the ACE-FTS measurements, along with the relative contribution of the instrumental noise. The latter is the main contributor to the error budget. The other contributions include principally uncertainties in the retrieved temperature profiles (a 1 K uncertainty on each retrieval altitude was considered) and fitted interfering species.

Altitude (km)	Retrieval error (%)	Instrumental noise contribution (%)
6–12	1.9	60
12–25	0.5	71
25–50	0.5	69
50–80	1.1	98
80–100	1.1	96

gases, pressure, and temperature, by solar occultation. The baseline species retrieved from the v2.2 occultation measurements are O₃, CH₄, H₂O, NO, NO₂, ClONO₂, HNO₃, N₂O, N₂O₅, HCl, CCl₃F, CCl₂F₂, HF, and CO (Boone et al., 2005). While in orbit, the SCISAT instruments observe up to 15 sunrises and 15 sunsets per day. The vertical sampling is about 3–4 km, on average, from the cloud tops up to about 105 km. Thanks to its excellent signal-to-noise ratio (effective SNR better than 200–300 over much of its spectral range) and 2 s measurement time, ACE-FTS provides accurate measurements with high vertical sampling, but its horizontal resolution is limited by the 500 km path length of solar occultation technique.

2.2 ACE-FTS CO retrievals

The ACE-FTS CO profiles (Boone et al., 2005) are retrieved by analysing sequences of solar occultation measurements taken during a sunrise or sunset, as seen from the satellite. These analyses take advantage of absorptions in both the fundamental 1-0 (4.7 μ m) and the overtone 2-0 (2.3 μ m) CO ro-vibration bands (Clerbaux et al., 2005). Because a large range of optical thicknesses is encountered during a sequence of measurements, the CO retrieval can best be performed using transmittance information from both absorption bands. Figure 2 illustrates the CO spectra as recorded at different tangent altitudes during one ACE-FTS occultation sequence. At high altitudes (>60 km), the CO generated from the CO₂ photo-dissociation is the strongest absorber in the 4.7 μ m spectral range, but the lines saturate at lower tangent heights and the interferences from other atmospheric species (H₂O, O₃, N₂O, CO₂) increase. Both the saturation and the interferences prevent an accurate tropospheric CO retrieval using this spectral region only.

In the ACE-FTS retrieval process, which uses a global-fit method in a general non-linear least squares minimization scheme (Boone et al., 2005), a set of microwindows that vary with altitude in the fundamental band and in the overtone band are used to retrieve CO. The use of the intense 1-0 band provides information on the upper parts of the atmosphere, whereas the 2-0 band provides information at the lowest alti-

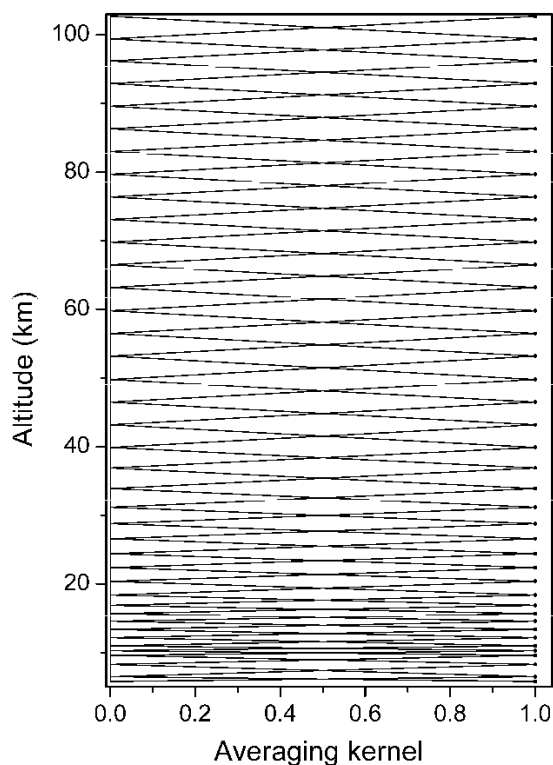


Fig. 3. Typical CO averaging kernels for ACE-FTS, using the microwindows shown in Fig. 2, and an Optimal Estimation Method without a priori constraints. The vertical resolution is ~ 2 km in the troposphere and 4 km above, for a beta angle of -50.6° . At low beta angles, the vertical resolution might reach 6 km at the highest altitudes.

tudes, when the signal from the fundamental band saturates. The microwindow sets used for the ACE-FTS version 2.2 retrievals are indicated in Fig. 2 and listed in Table 1. The molecules that are explicitly included as interferers in the retrieval of the target molecule are reported, and the mixing

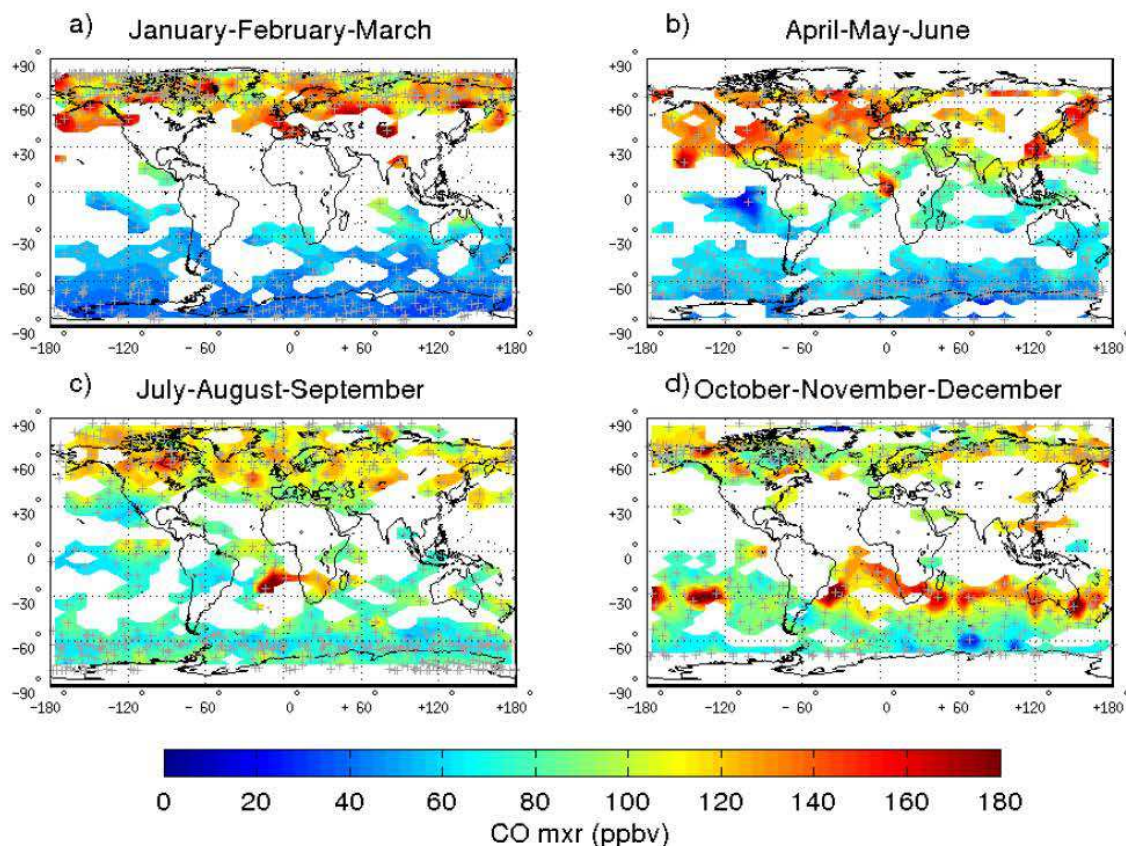


Fig. 4. ACE-FTS CO seasonal measurements in 2005 at 7.5 km. The data are interpolated to a 4° latitude \times 8° longitude grid. The grey crosses indicate the ACE-FTS measurement locations (tangent heights). The lowest altitude measured by the ACE-FTS varies with the satellite orbit and the presence of clouds.

ratio profiles for these interfering gases are fitted simultaneously with the target CO profile. The ACE-FTS profiles are provided on a 1-km vertical grid. To obtain the 1-km grid data products, an a posteriori piecewise quadratic interpolation scheme method is used to interpolate between the altitudes of the original measurement grid. It is worth noting that sometimes the first CO level (at low altitude) should be treated with caution. The v2.2 data products are provided with a fitting error calculated for each altitude. A detailed budget of the retrieval and instrumental errors can be estimated (see Clerbaux et al., 2005). It includes contributions from the instrumental noise, from the instrument line shape function, from the so-called smoothing effect (the fact that the information is integrated over several km on the vertical), and from uncertainties in the temperature and interfering trace gases profiles. Table 2 summarizes the retrieval errors in terms of partial columns, as currently estimated for the ACE-FTS version 2.2 CO retrievals. The error is the largest (2%) for the 6–12 km columns, where the errors due

to interfering species and temperature uncertainties have the strongest impact; it decreases to 0.5% for the 12–25 and 25–50 km columns and finally increases again to about 1% for the 50–80 and 80–100 km columns. The errors in the individual retrieved levels of the CO profile is less than 10% in the troposphere (except for the very first levels below 8 km) and the stratosphere, and between 5 and 20% at higher altitudes. The measurement noise provides the dominant contribution to the error budget over the entire altitude range, with contributions ranging from 60–70% in the upper troposphere and the stratosphere to more than 90% higher up (Table 2).

2.3 ACE-FTS CO distributions

The very high signal-to-noise ratio achieved by the ACE-FTS and its ability to sound deep down in the atmosphere provide profile measurements of weakly absorbing species into the upper troposphere. This excellent tropospheric sounding performance has been highlighted in several recent papers

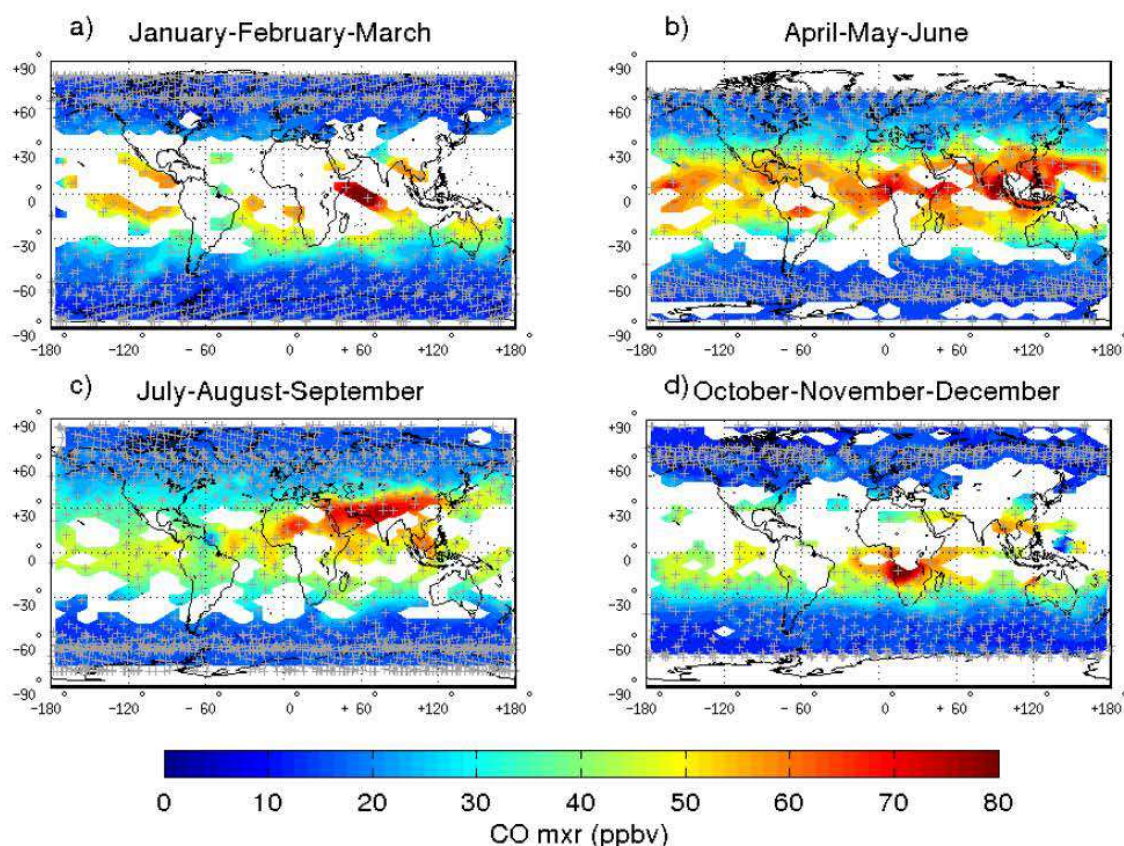


Fig. 5. ACE-FTS CO seasonal measurements in 2005 at 16.5 km. The data are interpolated to a 4° latitude \times 8° longitude grid. The grey crosses indicate the ACE-FTS measurement locations (tangent heights). Note that the tropical latitudes are not well covered in January–February–March and October–November–December as the satellite orbit was optimized to study the polar regions in winter.

(Rinsland et al., 2006b, 2007a, 2007b; Coheur et al., 2007; Dufour et al., 2007; Turquety et al., 2008). Previous scientific studies have discussed the CO vertical profiles (v1.0 and v2.2) obtained from ACE-FTS since March 2004 (just after scientific commissioning was completed on 21 February 2004) (e.g. Clerbaux et al., 2005 (v1.0); Rinsland et al., 2005; Folkins et al., 2006). For CO, version 2.2 provides improved performance in the troposphere, as many microwindows sensitive to lower altitudes were added to the retrievals.

The altitude spacing of the ACE-FTS measurements, controlled by the scan time and the orbit of the satellite, varies with the beta angle (the angle between the satellite velocity vector and a vector from the Earth to the Sun). The altitude spacing ranges from 2 km for long occultations with high beta (around 55°) to 6 km when the sun sets (or rises) exactly perpendicular to the Earth horizon (occultations with beta angle zero). Note that the altitude spacing compresses at low altitudes (below about 40 km), primarily a consequence of refraction distorting the solar image viewed through the at-

mosphere. This is clearly seen from Fig. 3, which shows the vertical sensitivity functions, known as averaging kernels, for a typical CO retrieval using an Optimal Estimation Method (Rodgers, 2000) without a priori constraints, such as to resemble the general least-square retrievals performed operationally for version 2.2. For the particular case of Fig. 3, the vertical sampling is as good as 1.5 km in the troposphere and around 4 km in the mesosphere. There have been improvements in the retrievals and averaging kernels near 20–25 km, compared to v1.0 (Clerbaux et al., 2005), due to the combined use of the 1-0 and 2-0 ro-vibrational bands to retrieve CO at those altitudes.

After 3.5 years of operation, ACE-FTS observations have been performed all over the globe, however there were more frequent measurements at high latitudes, as the primary goal of the mission was to study the polar ozone chemistry. Figures 4 to 6 provide representative plots of CO at different altitude levels (mid-troposphere, upper troposphere/lower stratosphere (UTLS), and stratosphere/mesosphere) for the

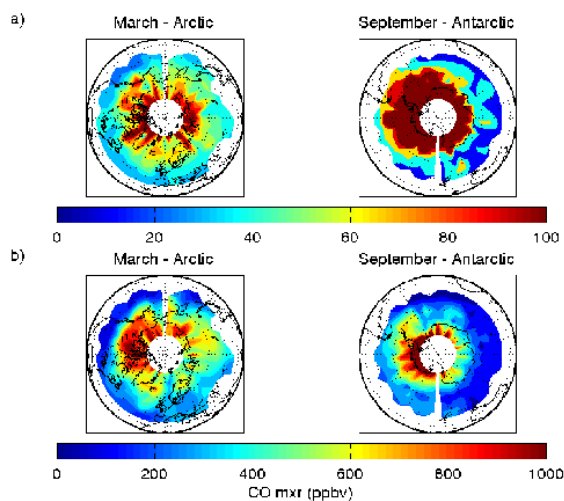


Fig. 6. ACE-FTS CO polar measurements in March and September 2005 at (a) 49.5 km and (b) at 59.5 km. The data are interpolated to a 6° latitude \times 8° longitude grid. We used polar projections over the Arctic (left plots) and the Antarctic (right plots) to illustrate the descent of CO-rich air masses in polar vortex situations.

year 2005. The years 2004 and 2006 (not shown here) exhibit similar high concentration values at specific locations/altitudes. Figure 4 illustrates the seasonal CO abundance distribution as measured by ACE-FTS in the mid-troposphere (around 7.5 km) for different seasons in 2005. As can be expected (e.g. Clerbaux et al., 2004; Edwards et al., 2004), in the Northern Hemisphere, most of the pollution is associated with urban activity, with persistent high values above China (see Fig. 4b) and elevated levels over US, Europe and Asia in winter and spring (Fig. 4a and b). CO levels are lower in the Northern Hemisphere during summer and fall, when sunlight produces high OH levels which activate chemical loss of CO. In the Southern Hemisphere, the CO pollution plumes emitted locally, where vegetation burning occurs, such as in South America, Africa and Australia spread from regional to global scales. As reported by others (e.g. http://earthobservatory.nasa.gov/Newsroom/NewImages/images.php3?img_id=17724) intense fire activity and hence high CO levels were observed (starting from September 2005) over the Amazon basin, with some additional contribution from fires in Southern Africa. The transported plume can be observed in Fig. 4c and d, around 30° S.

In the UTLS, vertical transport may be investigated from the satellite CO vertical distributions (Notholt et al., 2003; Edwards et al., 2006; Ricaud et al., 2007; Park et al., 2008). Figure 5 a–d shows the global scale seasonal distributions at 16.5 km altitude, from which the high CO concentrations from convection occurring at tropical latitudes can clearly be seen. The plots illustrate the seasonal changes in convective

outflow and biomass burning activity. From July to September (Fig. 5c), when the Asian summer monsoon is the dominant circulation feature, high levels of CO are observed over Asia (also see Park et al., 2008). During the other months (Fig. 5b, d), maximum amounts are observed over Africa, South America and Asia, but horizontal transport can be observed throughout the tropics.

Figure 6a–b illustrates the strong downward transport of CO-rich air in the winter polar vortex. The CO produced in the lower thermosphere from CO_2 photolysis is transported to the middle stratosphere by the mean meridional circulation (Kasai et al., 2005b; Velasco et al., 2007). The plots show the descent of CO-rich air produced around 80 km when vortex situations occur, in March over the Arctic pole (Fig. 6, left plots) and in September over the Antarctic (Fig. 6, right plots). A complete discussion of the effects of unusual meteorological conditions on transport and chemistry for the 2004–2006 period is described in Manney et al. (2008, this Special issue).

3 Correlative CO measurements

3.1 The ACE validation exercise

The validation of the ACE-FTS version 2.2 data is organized by data product (see the other papers of this Special issue). CO data from the first three years of the mission, extending from February 2004 (since the first ACE-FTS CO data became available) to the end of 2006, were made available to the validation team and are included in this paper. Primarily, the 1-km interpolated grid data were used in the comparisons.

Validation data used for these CO comparisons were provided by eleven ground-based stations, from routine airborne measurements, from one accurate high-altitude balloon-borne observation, and from five satellite instruments (two using nadir observations, three using limb-viewing observations). Each instrument uses a different measurement technique, sounding geometry, and dedicated retrieval algorithm (which relies on a forward radiative transfer code, a spectroscopic database, and a minimization scheme) to extract the desired CO abundances from the raw data (see Table 3). All the instruments reported here used the HITRAN spectroscopic database (Rothman et al., 2005). Although the HITRAN edition might differ, the changes did not concern the CO line parameters and it was verified (E. Mahieu, personal communication) that it did not impact the retrieved results.

The CO measurements are retrieved over different altitude ranges (see Fig. 1 for a representation of the altitude spanned for each device), with different vertical resolutions and maximum sensitivity. To properly account for the different vertical sensitivities of the correlative observations, the CO profile of the instrument with the higher profiling capability is smoothed by convolution with the averaging kernel functions

Table 3. Ground-based, airborne and satellite instruments used for the ACE-FTS CO validation.

Instrument	Location	Vertical sensitivity ^{b/} resolution	Estimated accuracy	Time period	Coincidence criteria	Number of coincidences
FTIR Ground-based measurements						
THULE	76.5° N, 68° W	0.2–25 km	<10%	2004/03–2006/03	24 h/1000 km	20
KIRUNA ^a	67.8° N, 20.4° E	0–25 km	0–10 km: 2% >10 km: 15–20%	2004/03–2006/03	24h/1000 km	39
POKER FLAT	65.1° N, 147.4° W	0–24 km	Tot.col: 3.5% Part.col: 10–15%	2004/03	24h/1000 km	5
HARESTUA	60.2° N, 10.8° E	0.5–25 km	0–10 km: 3.5% >10 km: 15–25%	2004/09–2005/07	24h/1000 km	12
ZUGSPITZE	47.4° N, 11° E	3–25 km 4 km tropo 10 km strato	5–10%	2004/06–2006/07	24h/1000 km	21
JUNGFRAUJOCH	46.55° N, 7.98° E	3.58–25 km	<10%	2004/07–2006/07	24h/1000 km	21
TORONTO	43.66° N, 79.4° W	0–25 km	Tot.col: 2.6% Tropo.col: 2.7% Strato.col: 7.4%	2004/06–2006/06	24h/1000 km	8
IZANA ^a	28.3° N, 16.5° W	0–25 km	0–10 km: 2% >10 km: 15–20%	2004/08–2005/08	24h/1000 km	4
LA REUNION	21.5° S, 55.5° E	0–20 km	7–20 km: 12–17%	2004/08–2004/10	24h/15°lon, 10°lat	3
WOLLONGONG	34.5° S, 151° E	0–25 km	Tot.col: 3% 0–12 km: 4%>12 km: 10%	2004/10–2005/11	24h/1000 km	5
MW Ground-based measurements						
CERVINIA	48.9° N, 7.7° E ^c	35–90 km	Column density: 10.5%	2004/12	24h/1000 km	2
Airborne measurements						
SPIRALE	67.7° N, 21.5° E	13–27 km	6%	2006/01	24h/1000 km	1
MOZAIC	20° N–51° N, 119° W–140° E	5–12 km	±5 ppbv±5%	2004/04–2005/10	24 h/9°lat, 10°lon	108
Satellite measurements						
MOPITT/Terra (nadir)	all latitudes, all longitudes	0–16 km	10%	2004/02–2006/12	same day/5°lat, 5°lon	3485
TES/Aura (nadir)	all latitudes, all longitudes	0–16 km	10%	2004/09–2006/11	24 h/300 km	3855
MIPAS/Envisat (limb)	51° N–81° N, 97° W–180° E	10–70 km 6–12 km	Tropo: 10–30% Strato: 30–70% 45–70 km: 10–30%	2004/02–2004/03	18 h/800 km	99
SMR/Odin (limb)	all latitudes, 0°–186° E	20–110 km <65 km: 2–4 km >65 km: ~6 km	Strato: 25 ppbv Meso: 1–2 ppmv	2004/03–2006/02	10 h/9°lat, 10°lon	99
MLS/Aura (limb)	82° N–82° S, all longitudes	10–85 km 3–4 km	Strato: 30% Meso: 20%	2004/09–2006/10	same day/0.75°lat, 12°lon	2156

^a These stations use PROFFIT 9.2. version 9 inversion algorithm (Hase et al., 2004), and the retrievals are performed on a log vmr-scale. All other GB-FTIR stations use SFIT2 inversion algorithm (different versions) (Pougetchev and Rinsland, 1995; Rinsland et al., 1998). Note that both codes were compared in an extensive study, resulting in an agreement of columns of better than 1% (Hase et al., 2004).

^b FTIR stations might have some sensitivity higher in the atmosphere, as demonstrated in Velasco et al., (2007).

^c Location for Cervinia measurement is at intersection of slant-angle radiometer beam with 60 km altitude, not station location.

of the instrument with the lowest vertical sensitivity (Rodgers and Connors, 2003):

$$\mathbf{x}_{\text{smoothed}} = \mathbf{x}_{a,\text{low}} + \mathbf{A}_{\text{low}} (\mathbf{x}_{\text{high}} - \mathbf{x}_{a,\text{low}}) \quad (1)$$

where \mathbf{x}_{high} is the high resolution profile, $\mathbf{x}_{a,\text{low}}$ is the a priori profile used for the retrieval of the low resolution profile, and \mathbf{A}_{low} is the averaging kernel matrix, with $\mathbf{A} = \partial \hat{\mathbf{x}} / \partial \mathbf{x}$, characterizing the low resolution profiles. The rows of \mathbf{A} define the vertical resolution of the retrieval (full width at half maximum), and the trace of the matrix defines the number of statistically independent elements that can be retrieved, or degrees of freedom for signal (DOFS).

3.2 Ground-based data

Eleven ground-based stations routinely measuring CO profiles/columns at different locations around the globe contributed to this validation exercise. Ten of these stations use FTIR spectrometers to sound the troposphere and lower stratosphere, and one is operating in the millimeter wave spectral range.

3.2.1 FTIR measurements

FTIR spectrometers make direct solar absorption observations throughout the day, under clear sky conditions. The infrared spectral range that is covered extends from about 600 to 4300 cm⁻¹, a range similar to that of ACE-FTS. In this spectral range, a very large number of species of atmospheric relevance can be detected. Profiles or partial column

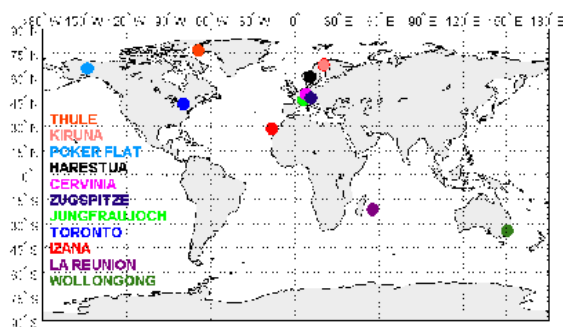


Fig. 7. Geographic locations of the 11 ground-based validation stations used in this paper. Note that there are only two stations located in the Southern Hemisphere (La Réunion and Wollongong), and that four stations are located at latitudes where dynamics can be perturbed by the location of the polar vortex (Thule, Kiruna, Poker Flat, and Harestua).

CO data can be derived (Notholt et al., 2003; Barret et al., 2003; Hase et al., 2004). The FTIR measurements contains about two pieces of information that allow to retrieve CO abundances in the lower to middle troposphere and in the upper troposphere-lower stratosphere, almost independently.

Figure 7 and Table 3 provide the geographical distributions along with retrieval information for the ground-based ACE-FTS CO validation stations, with the following abbreviations:

- THULE (Greenland, Goldman et al., 1999),
- KIRUNA (Sweden, Blumenstock et al., 2006),
- POKER FLAT (Alaska, Kasai et al., 2005a),
- HARESTUA (Norway, Paton-Walsh et al., 1997),
- ZUGSPITZE (Germanic Alps, Sussmann and Borsdorff, 2007),
- JUNGFRAUJOCH (Swiss Alps, Rinsland et al., 2000),
- TORONTO (Canada, Wiacek et al., 2007),
- IZANA (Canary Islands, Schneider et al., 2005),
- LA REUNION (Indian Ocean, Senten et al., 2008),
- WOLLONGONG (Australia, Jones et al., 2007).

3.2.2 Microwave measurements

Microwave spectrometers observe molecular rotational/vibrational spectra in emission from thermally excited states in the spectral range ~ 20 – 300 GHz. They can therefore operate day or night, limited only by tropospheric opacity due primarily to varying water vapour column density. They are not affected by aerosol loading. Since

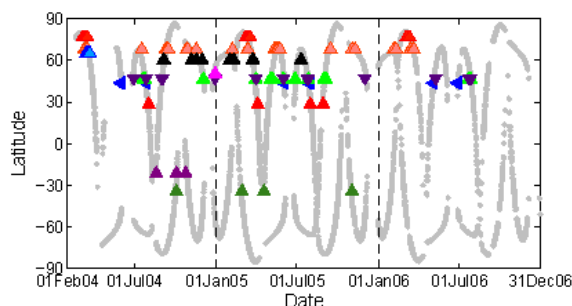


Fig. 8. Coincidences between ACE-FTS measurements (in light gray, ACE occultation latitude versus time of year) and the ground based stations, for the three years of the mission. The color code for each station is the same as in Fig. 7. The coincidence criteria are provided in Table 3. Note that if time coincidences occur for a same station, symbols might be superposed.

they observe in emission, they are not self-calibrating, and must be independently calibrated against millimeter sources of known intensity. For the instrument at CERVINIA (de Zafra et al., 2004), when used in a radiometer mode to get total column density, this calibration uncertainty, along with uncertainty in continuous measurements of tropospheric attenuation, are the only significant sources of error. For this instrument, observations are made at a slant angle of 9–10 degrees in a due north direction, giving a stratospheric/mesospheric point of intersection about 3 degrees north of the ground station location, and this has been used in considering closest matches with ACE-FTS measurements. The location of this station, in the Italian alps, and the retrieval details are also reported in Fig. 7 and Table 3.

3.3 Airborne data

3.3.1 SPIRALE (high altitude balloon)

The Spectroscopie Infra-Rouge d’Absorption par Lasers Embarqués (SPIRALE) is a balloon-borne six tunable diode laser absorption spectrometer (Moreau et al., 2005). It is routinely operated at all latitudes, in particular as part of European satellite validation campaigns (Odin and Envisat). It can perform simultaneous in situ measurements of about ten long-lived and short-lived chemical species from about 10 to 35 km height, with high sampling frequency (~ 1 Hz), thus enabling a vertical resolution of a few meters depending on the ascent rate of the balloon. The diode lasers emit in the mid-infrared (from 3 to $8 \mu\text{m}$) and the beams are injected into a multipass Herriott cell that is located under the gondola and is largely exposed to ambient air. The cell (3.5 m long) is deployed during the ascent when pressure is lower than 300 hPa. The multiple reflections obtained between the

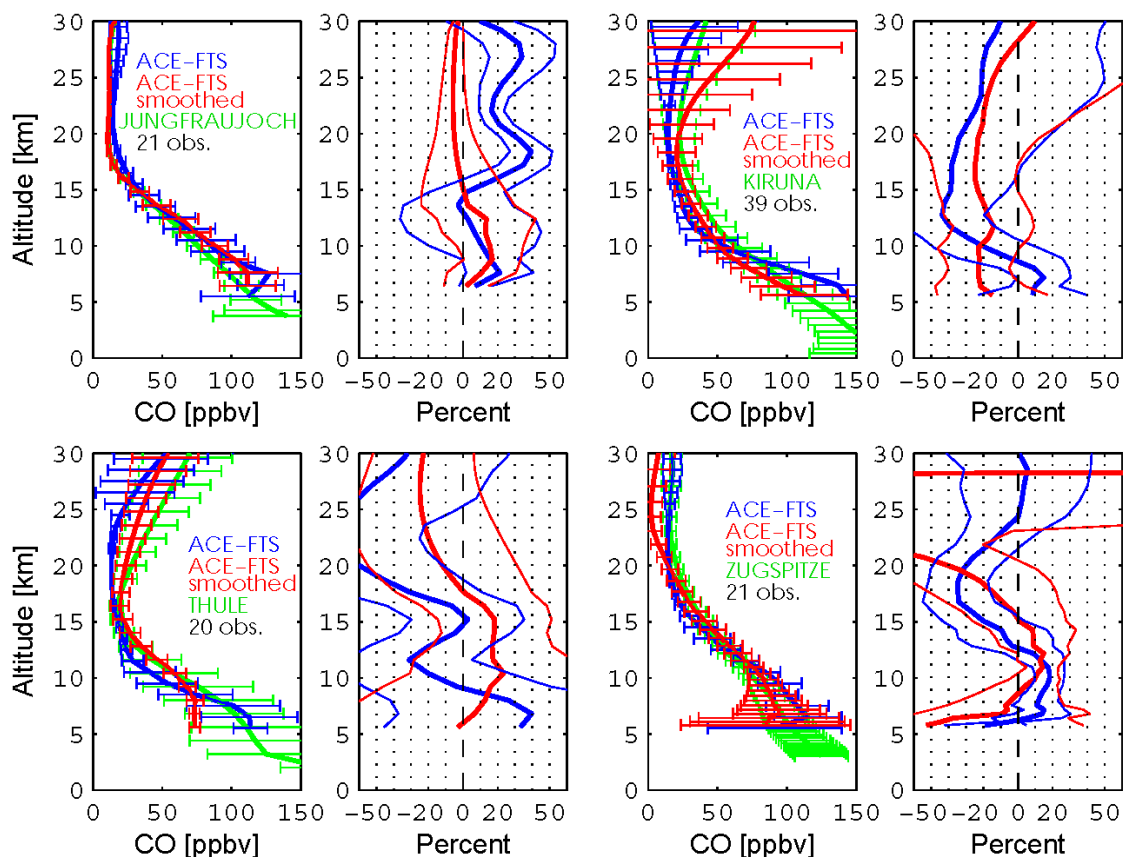


Fig. 9. Left panel, for each ground-based (GB) station (Jungfraujoch, Kiruna, Thule and Zugspitze): Averaged CO mixing ratio profiles and variability for ACE-FTS (in blue: raw data, in red: after treatment with the corresponding ground-based averaging kernels) and for the collocated corresponding ground-based measurements (green). Right panel, for each ground-based station : averaged percent difference between ACE-FTS and GB ($(CO_{ACE} - CO_{GB}) / (1/2(CO_{ACE} + CO_{GB}))$) calculated for all the coincident observations (thick line), along with their standard deviation (thin lines).

two cell mirrors give a total optical path of 430.78 m. Species concentrations are retrieved from direct infrared absorption, by fitting the experimental spectra to spectra calculated using the HITRAN 2004 database (Rothman et al., 2005). Specifically, the ro-vibrational line at $2086.3219 \text{ cm}^{-1}$ was used for CO.

3.3.2 MOZAIC (airplane)

The MOZAIC program (Marenco et al., 1998) has equipped five commercial airliners with instruments to measure ozone and relative humidity since 1994, and carbon monoxide since 2001. Measurements are taken from take-off to landing (Thouret et al., 1998). Based on an infrared analyser, the carbon monoxide measurement accuracy is estimated at $\pm(5 \text{ ppbv} + 5\%)$ for a 30 s response time (Nedelec et al.,

2003). The five MOZAIC aircraft make near-daily flights between Europe and a variety of destinations throughout the world. Measurements for more than 26 000 long-haul flights are recorded in the MOZAIC data base that is freely accessible for scientific use (URL: <http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/>).

3.4 Nadir-looking satellites

3.4.1 MOPITT/Terra

The Measurements Of Pollution In The Troposphere (MOPITT) remote sensing instrument was developed by Canada and the US and was launched aboard the EOS Terra satellite in December 1999. It began routine measurements in March 2000 and is still in operation. The Terra spacecraft is in a near-circular, sun-synchronous orbit with an inclination of

Table 4. Averaged percent difference and standard deviation between ACE-FTS and each ground-based (GB) station. The calculation was done for partial CO columns, for each coincident set of profiles using $(100 \times |(\text{CO}_{\text{ACE}} - \text{CO}_{\text{GB}})|) / 1/2 (\text{CO}_{\text{ACE}} + \text{CO}_{\text{GB}})$. Values in italics correspond to the calculation after smoothing with the GB averaging kernel functions. Values in parentheses correspond to calculation after filtering situations for which different air masses might have been sounded.

Ground-based station	Averaged relative difference (%)	Standard deviation (%)
THULE	37.1 (30.8) <i>26.5 (21.4)</i>	29.7 (21.5) <i>28.3 (15.4)</i>
KIRUNA	31.3 (31.2) <i>28.9 (28.3)</i>	24.2 (23.8) <i>16.5 (16.4)</i>
POKER FLAT	20.0 <i>15.6</i>	14.6 <i>8.5</i>
HARESTUA	40.4 (39.6) <i>19.0 (19.9)</i>	29.5 (32.3) <i>16.7 (18.3)</i>
CERVINIA	25.8	31.5
ZUGSPITZE	22.5 <i>24.3</i>	21.7 <i>21.6</i>
JUNGFRAUJOCH	16.7 <i>16.3</i>	10.5 <i>10.9</i>
TORONTO	24.5 <i>33.7</i>	11.2 <i>23.0</i>
IZANA	13.2 <i>13.1</i>	8.9 <i>6.9</i>
LA REUNION	18.5 <i>13.3</i>	15.3 <i>6.9</i>
WOLLONGONG	23.8 <i>27.0</i>	14.8 <i>24.7</i>

approximately 98.2 degrees. The descending node crossing time is 10:30 a.m. MOPITT views the Earth over all latitudes with a pixel size of 22 km by 22 km and a cross-track swath that provides a near-global measurement of the distribution of CO every three days.

MOPITT operates by sensing infrared radiation from either the thermal emission/absorption at $4.7 \mu\text{m}$ to measure CO profiles. The measurement technique exploits gas correlation radiometry to determine tropospheric concentrations. Operational MOPITT CO products available are currently based exclusively on thermal-channel radiances (Deeter et al., 2003; Emmons et al., 2004). The information content in MOPITT retrievals is better than a column in tropical and mid-latitude scenes, with some amount of profile shape information (DOFS between 1 and 1.8), and a maximum sensitivity around 5–8 km (Deeter et al., 2004). As the other thermal infrared instruments, MOPITT generally lacks sensitivity near the surface except during daytime and at locations where the thermal contrast (temperature gradient) between the surface and lower atmosphere is significant (Clerbaux et al., 2008).

This paper uses the version 3 retrievals from NASA Langley.

3.4.2 TES/Aura

The Tropospheric Emission Spectrometer (TES) is an infrared FTS on board the EOS Aura satellite launched in July 2004 (Beer, 2006). TES routinely operates in a nadir global survey mode with one-day-on followed by one-day-off cycles. The nadir footprint for a TES profile is $5 \text{ km} \times 8 \text{ km}$, separated by 180 km along orbit, since May 2005. TES nadir spectra are recorded at 0.06 cm^{-1} resolution and small micro-windows in the CO (1-0) band are used for CO profile retrievals. The signal levels in the TES filter detecting CO spectral absorptions are greatly enhanced due to the improved optical alignment after an optical bench warm-up performed in December 2005. As a result, the DOFS and the precision in TES CO retrievals are improved (Rinsland et al., 2006a). The DOFS for TES CO are up to two in the tropics and become less than one at high latitudes.

TES data are distributed by the NASA Langley Atmospheric Science Data Center. The data version used in this paper is V002. TES data consists of profiles of CO reported at 24 levels per pressure decade (e.g., 1000 hPa to 100 hPa) between the surface and 100 hPa ($\sim 16 \text{ km}$). Together with the retrieved profiles, the averaging kernels, the a priori profiles, and the retrieval errors are provided in the data files.

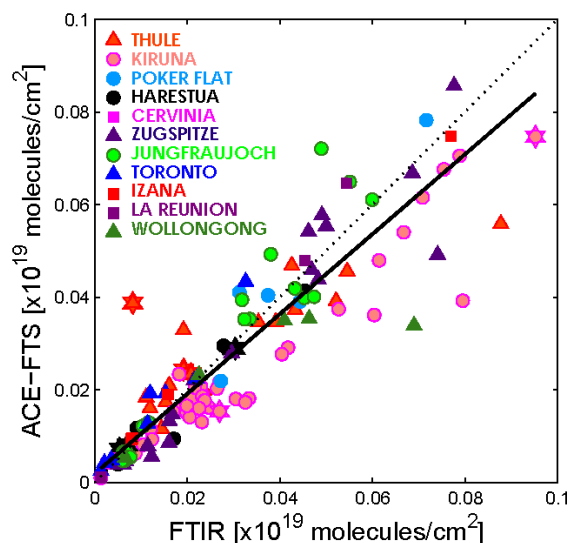


Fig. 10. Scatterplot of the ground-based CO partial column observations and the corresponding ACE-FTS CO partial columns calculated after treatment of profiles with the GB averaging kernel functions (except for the Cervinia station). The ground-based stations are identified by different colors (see legend). Each partial column is obtained by integration of the CO concentration from the lowest available ACE-FTS level (typically 6.5–8.5 km) to the altitude indicated in Table 3. Density profiles were obtained by interpolating of ECMWF temperature and pressure fields to match the time and location of each measurement. Special symbols (star) are used when the calculated values are believed to correspond to significantly different airmasses, in polar vortex situations (see text). The correlation coefficient is 0.91 (slope 0.86, intercept 0.0019).

3.5 Limb-viewing satellites

3.5.1 MIPAS/Envisat

The Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) is a limb emission FTS operating in the mid infrared spectral region (Fischer et al., 2008). It is part of the Environmental Satellite (Envisat) which was launched into its sun-synchronous polar orbit, with 98.55° inclination at about 800 km altitude, in March 2002. MIPAS operated from July 2002 to March 2004 at full spectral resolution (0.035 cm^{-1}). Within this standard observation (nominal) mode, MIPAS covered the altitude range from 6 to 68 km with tangent altitudes from 6 to 42 km every 3 km, and further tangent altitudes at 47, 52, 60, and 68 km. MIPAS passes the equator in southerly direction at 10:00 a.m. solar local time 14.3 times a day. During each orbit up to 72 limb scans are recorded.

Vertical profiles of CO are among the 20 trace species retrieved with the dedicated scientific IMK-IAA MIPAS data processor (von Clarmann et al., 2003). CO 1-0 emissions at

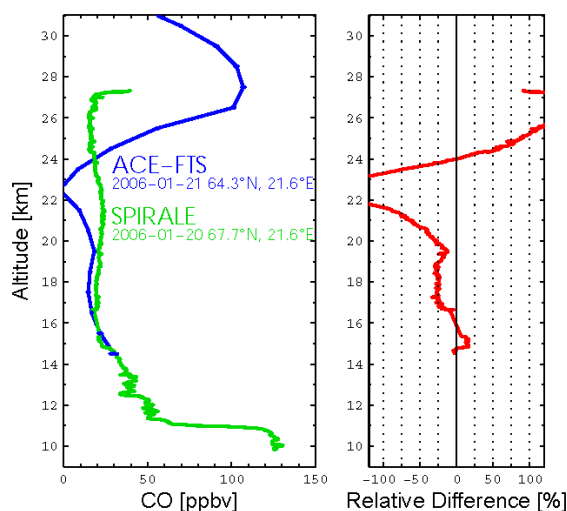


Fig. 11. Left: Averaged CO mixing ratio profile for ACE-FTS (blue) and for the co-located SPIRALE measurements (green). Right: The red line is the $\text{CO}_{\text{ACE}} - \text{CO}_{\text{SPIRALE}} / 1/2(\text{CO}_{\text{ACE}} + \text{CO}_{\text{SPIRALE}})$ percentage difference.

$4.7 \mu\text{m}$, strongly affected by non-local thermodynamic equilibrium (non-LTE) effects, are used in the retrieval scheme which fully accounts for non-LTE (Funke et al., 2007). In this study, we used MIPAS CO data (version 9.0) retrieved from MIPAS standard observations taken at full spectral resolution (spectra versions 4.61 and 4.62) during February–March 2004. The MIPAS vertical resolution varies between 6 and 12 km.

3.5.2 SMR/Odin

The Odin satellite was launched in February 2001 into a circular, sun-synchronous, quasi-polar orbit at 600 km altitude, with an inclination of 97.8° and ascending node crossing at 18:00 local time (Murtagh et al., 2002). The Sub-Millimetre Radiometer (SMR) aboard Odin measures thermal emission lines at the Earth's limb in the 486–581 GHz spectral range (Frisk et al., 2003). Measurements of CO and O_3 in the SMR strato-mesospheric mode (vertical scan range of 7–110 km) are performed regularly (one or two days per month since 2004) by observing rotational lines at 576.27 GHz (CO) and 576.52 GHz (O_3). The horizontal resolution is on the order of 600 km, with a horizontal spacing along the orbit track of $\sim 950 \text{ km}$.

The SMR CO data product discussed here is version-225 (or CTSO-v225, for Chaîne de Traitement Scientifique Odin), the reference version maintained at the Laboratoire d'Aérodynamie (Toulouse, France). CO profiles are retrieved from $\sim 20 \text{ km}$ to the lower thermosphere, with a typical resolution of 3 km throughout. The single-scan precision is

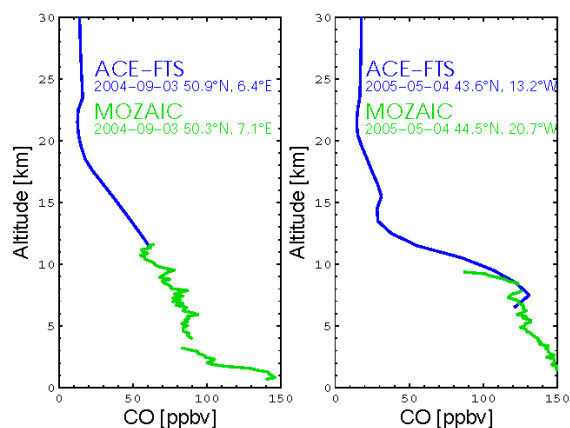


Fig. 12. Examples of co-located CO vertical mixing ratio profiles measured by ACE-FTS (blue) and by the MOZAIC airborne program (green). Note that the upper limit altitude of the MOZAIC measurement is often close to, or at the same altitude, as the ACE-FTS lowest measured altitude.

estimated at better than 25 ppbv in the stratosphere increasing up to 1–2 ppmv at ~ 80 km (Barret et al., 2006). The SMR CO measurements and data analysis methodology were described in detail by Dupuy et al. (2004). Early qualitative comparisons with ACE-FTS were published by Jin et al. (2005), whilst a detailed comparison of SMR/Odin with Aura/MLS can be found in Barret et al. (2006).

3.5.3 MLS/Aura

The Microwave Limb Sounder (MLS) (Waters, 2006) is one of four instruments on the EOS Aura satellite (Schoeberl et al., 2006) which was launched in July 2004. MLS is essentially a small radio telescope, viewing the Earth's limb in the orbit plane of the Aura satellite. Observations range from 82 degrees South to 82 degrees North every day and are spaced 140 km apart along the ground track. MLS detects thermally-emitted radiation in several bands of the sub-millimetre spectral region, at frequencies ranging from 118 GHz to 2500 GHz. The measurements are processed to obtain profiles of temperature, geopotential height and the mixing ratio of more than 14 chemical species.

The mixing ratio of CO is obtained from measurements of the spectral line at 230 GHz. Two separate spectrometers are centred on this spectral line: a conventional filter bank of 25 channels and a digital autocorellator spectrometer (DACS) with 129 channels. The DACS channels are 97.6 kHz wide giving a total width of 12.5 MHz. The conventional filter bank has channels of various widths ranging from 6 MHz to 96 MHz, giving a total bandwidth of over 1 GHz. Version 2.2 data products are used for these comparisons. The MLS retrieval technique is described in detail by (Livesey et al.,

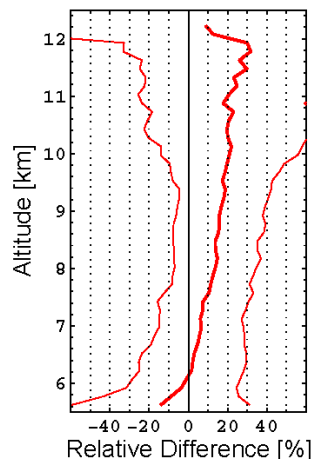


Fig. 13. Averaged percent difference between ACE-FTS and MOZAIC ($(CO_{ACE} - CO_{MOZAIC}) / (1/2(CO_{ACE} + CO_{MOZAIC}))$), calculated using all the coincident observations (thick red line), along with the corresponding standard deviation (thin red lines) for the years 2004 and 2005. The number of coincident profiles ranges between 4 (at 12 km) to 37 (at 8–9 km).

2006) and the validation of the 2.2 CO product is provided in (Pumphrey et al., 2007).

4 Validation results

4.1 Methodology used for the intercomparison

All the data used in this paper were obtained from the teams that are working on the routine retrieval and analysis of CO concentrations for their measurement device, and who helped us to select the most reliable data for the validation comparisons. The coincidence location criteria (ACE-FTS versus *instrument*) and the CO product to compare (profile, smoothed profiles, or integrated partial columns) were decided in agreement with the participants, and after discussion with the people involved in the validation of the ACE-FTS products, for consistent analyses.

In this paper, we used the same procedure to treat all the measurements provided by the participating groups:

1. Select the data that meet the location and time coincidence criteria (see Table 3),
2. Intercompare ACE-FTS versus *instrument* at the altitude range where both instruments are simultaneously sensitive,
3. Convolve the ACE-FTS profile with the instrument averaging kernels when relevant (see text for discussion) to account for the different instrumental vertical sensitivities,

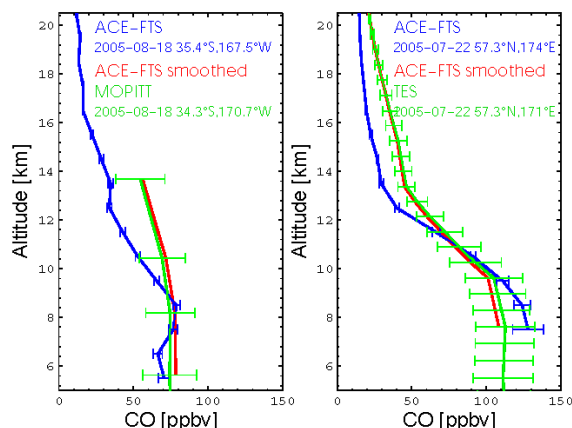


Fig. 14. Examples of co-located CO vertical mixing ratio profiles for ACE-FTS (blue) and two nadir-looking instruments (green): MOPITT (left) and TES (right). The retrieval errors are also reported (horizontal blue bars show ACE-FTS fitting errors from v2.2, and horizontal green bars at each retrieved level for the nadir-looking instrument). The red curve represents the convolution of the ACE-FTS profile with the averaging kernel function of the nadir-viewing instrument.

4. Calculate the percent difference $\text{CO}_{\text{ACE}} - \text{CO}_{\text{instrument}} / 1/2(\text{CO}_{\text{ACE}} + \text{CO}_{\text{instrument}})$, averaged over all the coincident observations, and the corresponding standard deviation,
5. Check if the co-location criteria used are stringent enough to sound similar air masses (for polar cases).

4.2 Ground-based data

A summary of the number of coincidences with ACE-FTS occultation measurements (for which ACE-FTS CO retrievals were available) is given in Table 3 for each ground-based station, along with an indication of the vertical sensitivity of the observation and the associated accuracy. A more complete description of each station, instrument and CO retrieval setup (inversion algorithm used and spectroscopic databases) can be found in the above-mentioned references (Sect. 3.2). After some tests, the coincidence criteria were chosen such that the measurements were within 24 h and within 1000 km. This ensured that there were at least a few matches per station. In case several ground-based profiles were available for one ACE occultation, the one that occurred closest in time was chosen. Figure 8 illustrates the time and location coincidences between the ACE occultation measurements and each of the ground based stations for February 2004–December 2006.

For the ground-based stations, the number of coincident CO observations was found to vary between 2 and 39, depending on the location of the station, the frequency of ACE-

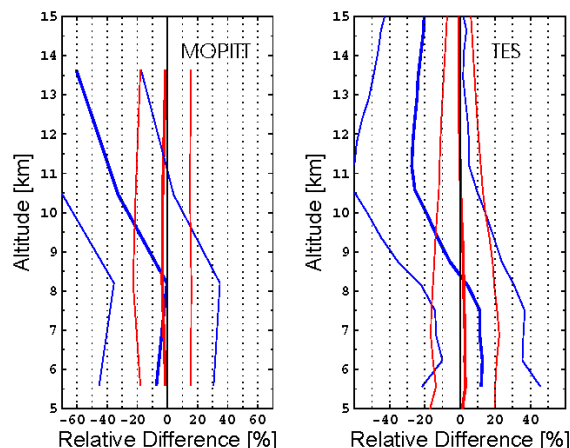


Fig. 15. Averaged percent difference $(\text{CO}_{\text{ACE}} - \text{CO}_{\text{nadir}}) / 1/2(\text{CO}_{\text{ACE}} + \text{CO}_{\text{nadir}})$, calculated using all the coincident observations (thick blue line), along with the corresponding standard deviation (thin blue lines) for the years 2004, 2005 and 2006 (left, MOPITT) and 2005–2006 (right, TES). The red lines are for the ACE-FTS profiles which are smoothed by the nadir sounder averaging kernel functions. For both instruments, the number of coincident profiles ranges between ~ 850 (at 6 km) to ~ 3400 (above 12 km).

FTS measurements at the latitude of the station and the cloud coverage. A smoothing of the ACE-FTS CO profiles was also performed according to Eq. (1), using the a priori profiles and averaging kernel functions provided along with the ground-based CO profile observations.

Figure 9 represents the averaged observations for the stations for which at least 20 co-located measurements were found, both with raw data and the smoothed ACE-FTS data. The direct comparison of profiles proved to be difficult (see percent difference in Fig. 9), as the ACE-FTS height range and vertical resolution differs strongly from that of the ground-based instruments. Although some individual profiles matched quite well, we decided, for the sake of consistency, to compare partial column values. These results are summarized as a scatterplot in Fig. 10. The integrated CO partial columns were calculated from the lowest altitude for which ACE-FTS CO results were available up to 25 km, unless indicated otherwise in Table 3. The density needed for the column calculations at the location of each measurement was obtained by interpolating the European Centre for Medium-Range Weather Forecasting (ECMWF) data in place and time. Table 4 summarizes the averaged percent relative difference and standard deviation per station. The averaged differences were found to range from 13% to 40%. We found a very good correlation of 0.91, although the data are scattered for high CO volume mixing ratio levels. The agreement has to be discussed keeping in mind the fact that the measurements are up to 1000 km apart and up to 24 h

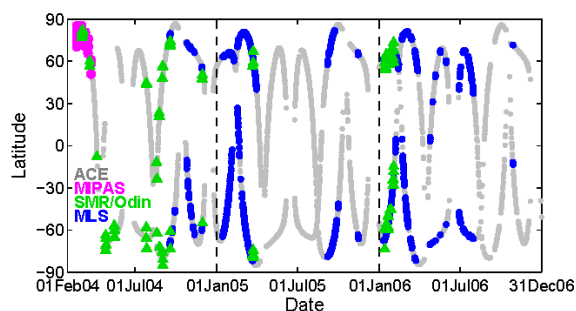


Fig. 16. Coincidences between the ACE-FTS measurement locations (in light gray, ACE occultation latitude versus time of the year) with the limb satellite measurements (MIPAS in magenta circles; SMR as green triangles; MLS in blue circles) in 2004, 2005 and 2006. The coincidence criteria are provided in Table 3. Note that if time coincidences occur for a same station, symbols might be superposed.

later, so some variability in the CO content is to be expected.

When looking at Fig. 10 and Table 4, the largest disagreements and standard deviations are observed over stations located at very high latitudes and hence where measurements may sample different regions of the polar vortex. For observations at high latitudes that were measured close to or within the polar vortex, further investigation was performed in order to check if both the validation and the ACE-FTS instrument have sounded the same air masses. For these cases, potential vorticity (PV) maps in the region of both measurements were calculated using the MIMOSA contour advection model (Hauchecorne et al., 2002), on isentropic surfaces at 475 K (~ 18 km) and the air masses were compared. The data potentially coming from different air masses are flagged with a different symbol (star) in Fig. 10 and the calculations of relative differences in Table 4 are provided with and without accounting for these specific situations.

4.3 Airborne data

4.3.1 SPIRALE (high altitude balloon)

Only one coincidence (Fig. 11) was found with the SPIRALE balloon measurements and it occurred on 20 January 2006 between 17:32 UT and 19:47 UT. The CO volume mixing ratio profile was obtained during ascent, between 10.0 and 27.3 km. The balloon measurement position remained rather constant, with a mean location of $67.6 \pm 0.2^\circ$ N and $21.55 \pm 0.20^\circ$ E. The comparison is made with the ACE-FTS sunrise occultation that occurred 13 h later (sr13151 on 21 January 2006 at 08:00 UT, 64.28° N, 21.56° E) and 413 km away from the SPIRALE position.

Similar to what was performed for ground-based stations, a potential vorticity map was calculated from the MIMOSA contour advection model in the region of both measurements.

They show that SPIRALE and ACE-FTS sounded similar air masses within the well-established polar vortex for the whole range of altitudes. The dynamical situation was stable with the PV agreement obtained to better than 10%. Even though ACE-FTS has a vertical resolution of 3–4 km and that of SPIRALE is more of the order of meters, smoothing the latter data with a set of triangular convolution functions (each 3 km at the base corresponding to the ACE resolution) did not change the shape of the SPIRALE CO profile.

For CO, the SPIRALE total uncertainty is estimated to be 6% over the entire altitude range. As shown in Fig. 11, the agreement is better than 22% between SPIRALE and ACE-FTS profiles for the altitude range 14–20 km. Between 20 and 24 km, the ACE-FTS profile is lower than SPIRALE by 36–120%. Above 24 km, the ACE-FTS profile becomes larger than SPIRALE with relative differences reaching 120% around 26–27 km. Although the SPIRALE instrument is providing more accurate measurements than ACE-FTS, it is difficult to draw conclusions based on a single winter profile located 400 km away and measured within the polar vortex. The ACE-FTS high positive values around 27 km might also be related to the negative ones around 23 km.

4.3.2 MOZAIC (airplane)

The CO measurements recorded during the MOZAIC commercial flights in 2004 and 2005 were compared with the ACE-FTS data. The collocation criteria, within 24 h and within a geographic distance of $\pm 9^\circ$ latitude and $\pm 10^\circ$ longitude, provided 108 matches. As there is only a small height range (localized between 6 and 12 km) where the CO measurements from both instruments overlap, we added an extra constraint such that at least three km of common observations should exist. The number of available co-located observations then decreased to 39. Figure 12 illustrates two typical examples where the highly resolved MOZAIC CO profiles connect well with the ACE-FTS data. Figure 13 summarizes comparisons between the two datasets for 2004 and 2005, by plotting the average of the percentage relative difference between the coincident ACE-FTS and MOZAIC data. The standard deviation of the differences is also provided, along with the number of data points used at each altitude. The agreement is very good, as the averaged difference is found to be lower than 16% between 6 and 12 km, in 2004–2005, with a positive bias. A parallel work performed with other airborne data (Hegglin et al., 2008) reports a 10% agreement for CO in the same altitude range.

4.4 Nadir-viewing satellites: MOPITT/Terra and TES/Aura

The MOPITT and TES nadir-viewing instruments provide global measurements using the thermal infrared emission of the Earth and the atmosphere to measure CO vertical profiles. As these two instruments have a small horizontal pixel

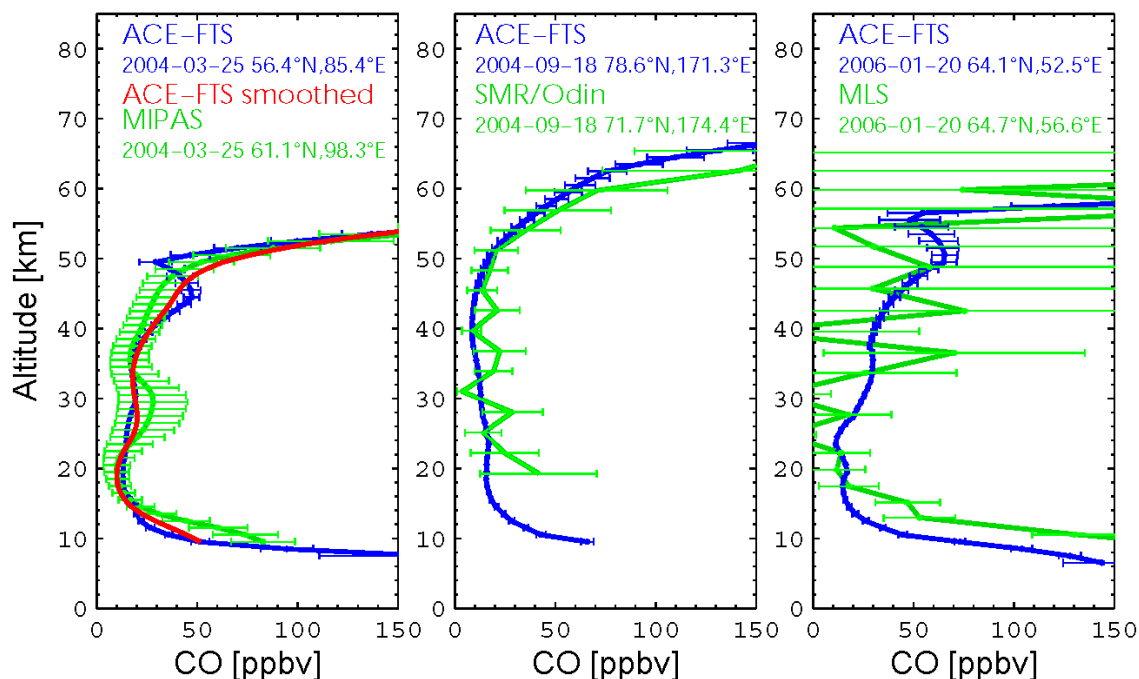


Fig. 17. Examples of co-located CO vertical mixing ratio profiles for ACE-FTS (blue) and three limb-looking instruments (MIPAS, SMR and MLS; in green). The retrieval errors are also reported (horizontal blue bars for ACE-FTS fitting errors from v2.2 files, and horizontal green bars for each limb-instrument). As MIPAS data are less vertically resolved, the ACE-FTS profile was smoothed by the MIPAS averaging kernels (in red).

Table 5. Summary of percent average difference on partial columns for the validation instruments, as a function of altitude, using $(100 \times (\text{CO}_{\text{ACE}} - \text{CO}_{\text{Instru}}) / 1/2 (\text{CO}_{\text{ACE}} + \text{CO}_{\text{Instru}}))$. When a smoothing was applied, data are provided in italics.

Altitude range (km)	Instrument							
	GB	SPIRALE	MOZAIC	MOPITT	TES	MIPAS	SMR	MLS
06–12			+15.5%	–25.2%	±17.9%	±22.1%		
	13–34%			–2.2%	±1.3%	±22.9%		
	(alt _{ACE} –25 km)			(5.5–13.6 km)	(6–14 km)			
12–20		–21.1%				–11.4%	–88.8%	–54.6%
		(14–20 km)				–20.1%		
20–30		110.4%				+26.4%	±17.7%	>±200%
		(20–27 km)				+8.0%		
30–50						–27.2%	–3.5%	±84.2%
						±18.6%		
50–80						–22.9%	+24.7%	±104.4%
						–5.3%		
80–100							+19.6%	

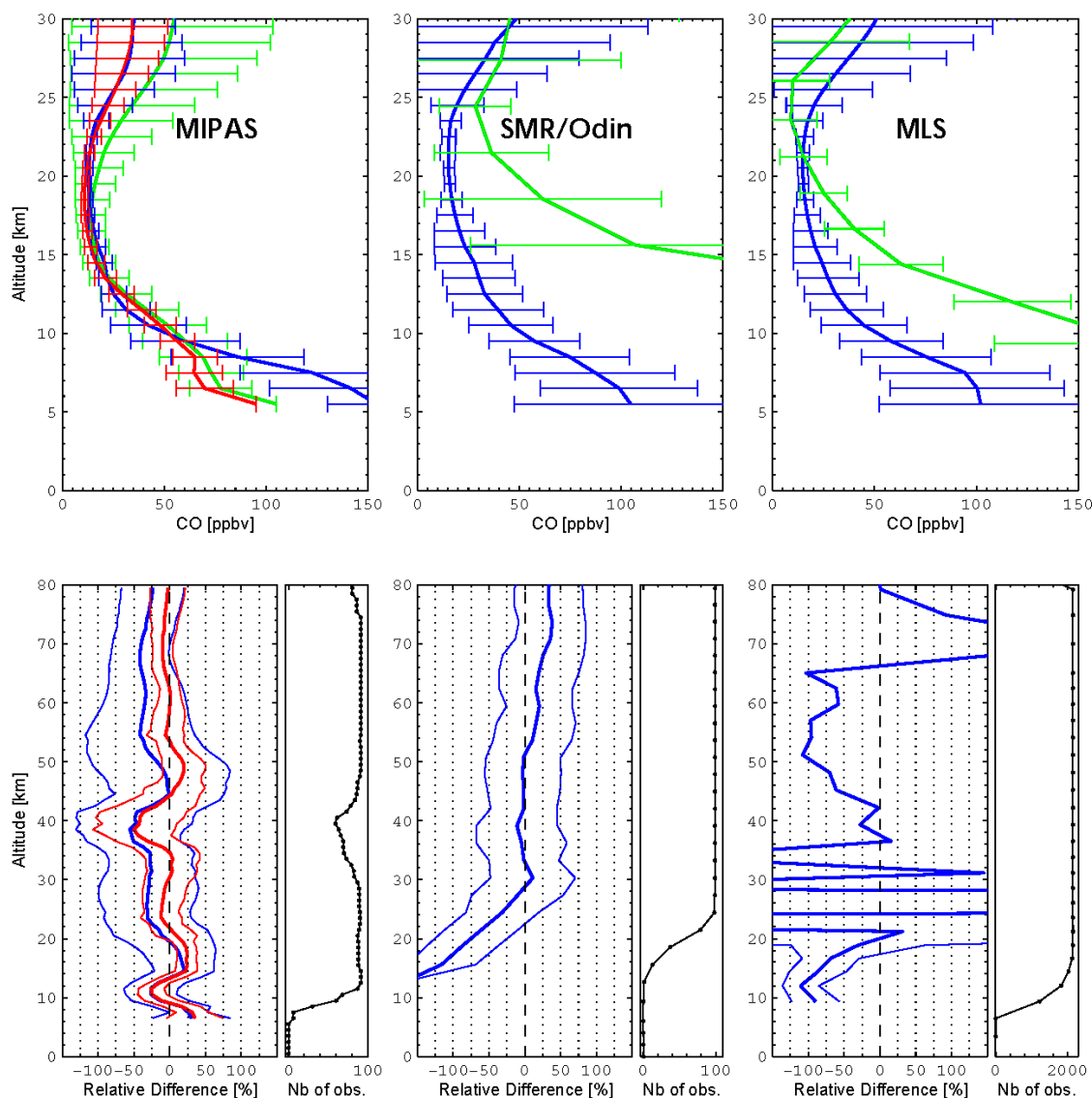


Fig. 18. Top panel: CO mixing ratio profiles, averaged over all the coincident observations, for ACE-FTS (blue) and three limb-viewing instruments (in green). The standard deviations are plotted as horizontal bars. ACE-FTS smoothed by the MIPAS averaging kernel functions is plotted in red. Bottom panel: Averaged percent difference ($(CO_{ACE} - CO_{limb}) / 1/2(CO_{ACE} + CO_{limb})$), along with the corresponding standard deviation (thin lines) for MIPAS (before and after smoothing ACE-FTS, in blue and red respectively), SMR and MLS. The number of data points included in the average, as a function of altitude, is also provided as sub-plots.

size and global coverage, coincidences with the ACE-FTS occultation measurements are numerous. This study was performed using the following criteria: same day and within 5° longitude, 5° latitude for MOPITT (version 3), and ± 24 h, within 300 km for TES (version V002). The choice of the coincidence criteria depended on how the data products are

stored for each mission. For both instruments more than 3000 cases were found, spanning 2004, 2005 and 2006.

As with every thermal infrared nadir-sounding instrument, TES and MOPITT lack sensitivity near the surface due to the small thermal contrast between the Earth's skin temperature and the first atmospheric levels, and the observations

they provide have a limited vertical resolution. Although the CO volume mixing ratio products are provided at several altitudes, the levels are strongly correlated and the number of pieces of independent information ranges between one (total column) and two (two partial columns), depending on the latitude, with a maximum sensitivity in the free troposphere and information up to about 16 km. As discussed in Luo et al. (2007a), both MOPITT and TES CO retrieved profiles are biased by their a priori; but when similar initial conditions are considered, TES and MOPITT agree reasonably (<5% global average with <20% root mean squares for individual cases). Accuracies for both instruments were estimated to be 10% using aircraft data (Emmons et al., 2004; Luo et al., 2007b), in places where the retrievals are not influenced by the a priori.

Interestingly, as MOPITT and TES both have their maximum sensitivity around 6–8 km, a useful comparison can be obtained in the upper troposphere. In order to account for the different vertical sensitivities in the comparisons, the ACE-FTS profiles have been smoothed using the corresponding MOPITT and TES characteristics and Eq. (1). Figure 14 shows one MOPITT/ACE-FTS and one TES/ACE-FTS example comparison of co-located profiles used in the validation exercise. It can be seen that, here again, we have only a few altitude levels in common between the measurements (ACE-FTS profiles start no lower than 5 km). As expected, when looking at the paired sets of observations, the ACE-FTS CO profiles show much more vertical variability, with often the 5–10 km CO mixing ratios being higher, and the 10–20 km CO mixing ratio being lower than the MOPITT or TES ones. As can be observed from Fig. 14, the smoothed ACE-FTS profiles match the nadir viewing observations very well. Figure 15 provides the mean and standard deviation results averaged for the thousands of coincident profiles studied for the period 2004–2006. For both instruments, without smoothing, the agreement is around 10% between 5.5 and 8.5 km, and the disagreement increases with a negative bias of –10 to –60% for MOPITT and around –25% for TES in the range 9 to 15 km. As MOPITT relies on a single global a priori whereas TES uses different latitude-varying a priori, we expected to find higher differences in the case of MOPITT. After convolution with the averaging kernels associated with each instrument, we have an almost perfect match (less than 2.2% discrepancy in the 5.5–15 km altitude range). Differences in retrieval diurnal sensitivity are also accounted for this way.

4.5 Limb-viewing satellites: MIPAS/Envisat, SMR/Odin and MLS/Aura

There are currently three spaceborne instruments providing regular CO measurements using limb geometry: MIPAS/Envisat (Funke et al., 2007), SMR/Odin (Barret et al., 2006) and MLS/Aura (Filipiak et al., 2005). As for ACE, these missions are not able to see the lowest layers of the

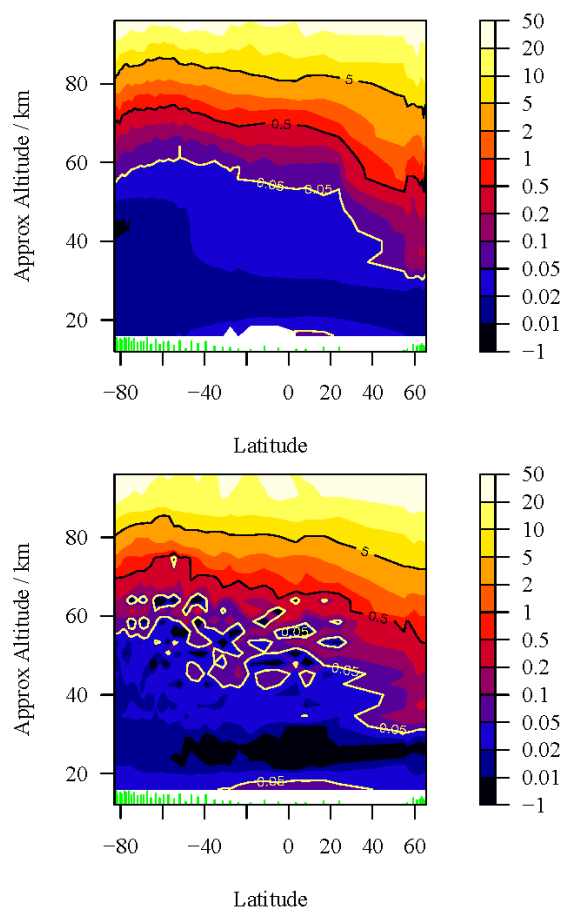


Fig. 19. ACE-FTS (top) and MLS (bottom) CO mixing ratios (ppmv) for 2 September–13 October 2006. For ACE-FTS the sunset latitude moves northwards during this period, so 2 September is at the left-hand side of the Figure. The ticks near the bottom of the Figure show the mean ACE-FTS latitude for each of the days plotted; the length of each tick is proportional to the number of ACE-FTS sunset profiles on that day. For each ACE-FTS sunrise profile we took the 5 closest collocated MLS profiles and average together all such profiles for the day, in order to reduce noise. The data have been smoothed in latitude, with a smoothing length of 3°.

atmosphere due to the increase in atmospheric opacity and occurrence of clouds.

A detailed validation study of SMR versus MLS is found in (Barret et al., 2006), and a detailed comparison of MLS CO results with other instruments is provided in (Pumphrey et al., 2007).

For each of the three instruments, the time and location coincidence criteria were carefully chosen in agreement with the participants (see Table 3 for the summary). Figure 16 illustrates the ACE latitudinal coverage as a function of the time with the coincidences associated with each limb

instrument indicated. When several observations matched the same ACE-FTS profile, we selected the closest in time.

For MIPAS, the CO measurements available (version 9.0) just overlapped with the beginning of the ACE mission. By the end of March 2004, MIPAS operation was suspended due to instrumental problems. MIPAS resumed its measurements by the beginning of 2005, however, with reduced spectral resolution. For comparison with ACE-FTS, only the high-resolution data are chosen. In the MIPAS sensitive range (10–70 km), the vertical resolution varies between 6 and 12 km, depending on altitude region and illumination conditions. The estimated precision is 10–30% except for the 20–45 km region with values around 30–70%. The accuracy is limited mainly by instrumental noise. Model errors due to uncertainties in the non-LTE modelling have been estimated to be less than 10% (Funke et al., 2007). During the February and March 2004 period, using a coincidence criterion of (± 18 h, ± 1000 km), about 100 matches were found. It is worth noting that a very strong polar vortex occurred in the 2004 Arctic winter, leading to downwelling of large amounts of CO into the upper stratosphere. The convolution of ACE-FTS profiles with MIPAS averaging kernel functions was found to be necessary, as MIPAS vertical resolution is lower than that of ACE-FTS, in particular during night and above 40 km.

For SMR CO observations, we used the data (CTSO, version 225) as described in Barret et al. (2006), with the following coincidence criteria: ± 10 h, $\pm 9^\circ$ latitude and $\pm 10^\circ$ longitude. A quality filter to select the more reliable data (good convergence and measurement response over 75%) led to 99 coincidences, with a vertical sensitivity from ~ 20 to 95–100 km, and an average vertical resolution of ~ 3 km.

The largest set of validation data is provided by the MLS/Aura instrument. More than 2100 coincidences were found using the following criteria: same day, $\pm 0.75^\circ$ latitude, $\pm 12^\circ$ longitude. Following the recommendations from Pumphrey et al. (2007), the MLS data (version 2.2.) were filtered using the following values for internal checks: L2gpPrecision > 0 ; and Quality > 0.2 ; and Status < 126 ; and Convergence < 1.8 . The vertical sensitivity of MLS ranges from 10 to 85 km, with 3–4 km vertical resolution over most of this range.

Typical CO profiles for each limb-viewing instrument are compared with the corresponding ACE-FTS CO data in Fig. 17. In general, the agreement per set of profiles is reasonable, depending on the altitude level considered. The ACE-FTS CO profiles are usually smoother than SMR and MLS (see Pumphrey et al., 2007 for further discussion), but the ACE-FTS v2.2 sometimes show oscillations (with even negative values) around 40–50 km, which might lead to large discrepancies when comparing with the other limb instruments at these altitudes.

Figure 18 provides the averaged profiles, the relative differences, the standard deviations and the number of coincidences per altitude, over the whole data set for each instru-

ment. When looking at the relative difference plots, for MIPAS (Fig. 18, bottom left plot) the agreement is very good. After smoothing with the averaging kernel, the differences between the convolved ACE-FTS and MIPAS profiles (red line) are within $\pm 26\%$ at all altitudes, except between 38 and 41 km where it reaches -50% . These differences are linked to the very unusual situation of strong CO-downward transport in the Arctic polar vortex in 2004, where most of the coincidences between ACE-FTS and MIPAS are located. When all the data above 70° N are filtered out, the differences were found to be further reduced (not shown here), but the number of coincident data decreased from 99 to 27.

SMR CO mixing ratios (Fig. 18, bottom middle plot) are considerably larger than those of ACE-FTS (by more than 50%) below ~ 22 km. Between 25 and 68 km, we found a very good agreement as the difference does not exceed 25%. Above 60 km, the ACE-FTS mixing ratios become larger than the SMR values.

For MLS, we found a negative bias below 20 km, large oscillating discrepancies between 20 and 35 km, a good agreement between 38 and 42 km, a negative bias ranging from -25% to -100% from 42 to 65 km, and a strong positive bias between 65 and 80 km.

Several studies comparing CO measured by the ACE-FTS, SMR and MLS limb sounders have already been published (Froidevaux et al., 2006; Barret et al., 2006; Pumphrey et al., 2007). Our results are broadly consistent with those studies however the plots might look different because we used $1/2$ ($\text{CO}_{\text{ACE}} + \text{CO}_{\text{limb}}$) to calculate the relative values, instead of CO_{limb} as was used in the above-mentioned papers. In the upper troposphere (below 20 km), we found that ACE-FTS CO profiles are much lower than those of MLS and SMR, in agreement with the results from Pumphrey et al. (2007) who have compared MLS version 2.2 and ACE-FTS CO. Livesey et al. (2008) also show that MLS CO is a factor of 2 too high at the 215 hPa retrieval level by comparison with MOZAIC airborne in situ data. In the lower stratosphere (below 30 km) ACE-FTS exhibits an underestimation of CO relative to MLS which is consistent with Pumphrey et al. (2007) and Froidevaux et al. (2006). Barret et al. (2006) reported an underestimation of MLS CO relative to SMR, especially in the tropics, at these altitudes.

Two dimensional latitude/altitude comparison plots for ACE-FTS and MLS are provided in Fig. 19, similar to what was reported in (Pumphrey et al., 2007). We display the ACE-FTS and coincident MLS data by taking a series of ACE-FTS measurements over latitudes moving from south to north between 2 September and 13 October, and plotting the mean daily profiles. To reduce noise, we averaged the closest MLS profiles to each ACE-FTS profile. Although the MLS data are more noisy and ragged, particularly near 45–60 km, it is clear that there are many similarities between the two datasets. We note in particular the high volume mixing ratios in the southern polar vortex. The biases between the two instruments can also be seen.

5 Summary and conclusions

This paper provides an assessment of the CO atmospheric profiles obtained during the first three years of the ACE mission, in order to quantify the level of agreement obtained with other available instruments. The ACE-FTS CO version 2.2 products are derived from solar occultation measurements, using two CO absorption bands located around 2100 cm^{-1} and 4250 cm^{-1} , which allows sounding the atmosphere from about 5 km up to 100 km. The vertical sampling ranges from 2 to 6 km, depending on the altitude and on the beta angle of the measurement. Although the horizontal coverage of ACE-FTS is limited by the solar occultation mode, when accumulating several months of measurements we show that interesting features can be studied in the mid-troposphere (transport of pollution plumes associated with pollution and biomass burning events), in the UTLS (convection over tropical regions) and in the stratosphere-mesosphere (descent of CO-rich air masses over the winter poles).

A comprehensive validation exercise was undertaken that involved the simultaneous analysis of partial column data derived from the routine profile observations from eleven ground-based stations, of profiles derived from balloon borne and aircraft observations, and of vertical distributions as measured by the available nadir and limb-looking satellites. For each instrument, we carefully selected the coincident and most reliable data products to intercompare (partial columns or part of vertical profiles). When required, an additional data processing step or constraint was added such as convolution with the averaging kernel functions, or sorting based on PV for high latitude ground-based stations.

The intercomparison of the ACE-FTS CO profiles at all altitude levels proved to be difficult as none of the correlative instruments provide measurements that cover the full range of the ACE measurements. A summary of the averaged percent differences, as a function of altitude, for all the instruments included in this validation paper, is provided in Table 5. In the mid to upper troposphere, we were able to compare the ACE-FTS CO data with partial columns provided by ground-based data, with the highly resolved profiles provided by MOZAIC (aircraft), and with the nadir observations from the MOPITT and TES nadir-looking instruments. For the latter, the agreement is excellent when the averaging kernel information is taken into account, although these results should be tempered by the fact that there is not much more than one piece of information available from the nadir-viewing satellite observations. As the maximum sensitivity of both TES and MOPITT are around the altitude of the first levels of the ACE-FTS CO observation, we can conclude that the ACE-FTS CO products are reliable between 6 and 10 km, with an agreement reaching 2.5% at these altitudes. We report a good agreement with the MOZAIC (15% on average between 6 and 12 km) and SPIRALE (around 25% or better below 20 km) measurements, despite the loose coincidence criteria. The comparison of partial columns retrieved by

ACE-FTS with partial columns retrieved from ground-based FTIR data at several locations revealed differences ranging between 13 and 34% when adequate smoothing is applied, with no systematic bias and standard deviations between 7 and 28%. The causes of the disagreement could be linked to atmospheric variability. In the stratosphere, from about 12 to 50 km, where the CO levels are usually very low, large discrepancies were found with SPIRALE balloon observation but it relies on one single coincident measurement in polar vortex conditions. From 20 to 100 km, comparisons performed with limb sounders show an agreement better than 30%, except for MLS. For the latter, individual profiles were found to be much noisier than the ACE-FTS data, but when averaged over longer time period and latitudes the CO atmospheric features agree well (Fig. 19). From these findings, combined with our initial estimation of the ACE-FTS retrieval errors, we assigned the following uncertainties to the ACE-FTS measurement data: better than 15% in the upper troposphere (8–12 km), than 30% in the lower stratosphere (12–30 km), and than 25% from 30 to 100 km.

Acknowledgements. The Atmospheric Chemistry Experiment (ACE), also known as SCISAT-1, is a Canadian-led mission mainly supported by the Canadian Space Agency (CSA) and the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada. Odin is a Swedish-led satellite project funded jointly by Sweden (SNSB), Canada (CSA), France (Centre National d'Etudes Spatiales, CNES) and Finland (Tekes). C. Clerbaux and S. Turquety are grateful to CNES for financial support. We thank Matthieu Pommier and Catherine Wespes for their contributions. The research in Belgium was funded by the F.R.S.-FNRS (M.I.S. n°F.4511.08), the Belgian State Federal Office for Scientific, Technical and Cultural Affairs and the European Space Agency (ESA-Prodex arrangements s C90-219). Financial support by the "Actions de Recherche Concertées" (Communauté Française de Belgique) is also acknowledged. ULg group members acknowledge that the International Foundation High Altitude Research Stations Jungfraujoch and Gornegrat (HFSJG), 3012 Bern, Switzerland, made it possible for us to carry out our experiments at the High Altitude Research Station at Jungfraujoch. The ground-based FTIR (and MW) data used in this publication were obtained as part of the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC). Data from these stations is publicly available from <http://www.ndacc.org>. SMR/Odin and MOZAIC data are stored in the Ether French atmospheric data base (<http://ether.ipsl.jussieu.fr>). Work at the Toronto Atmospheric Observatory was supported by NSERC, CFCAS, ABB Bomem, ORDCF, PREA, the University of Toronto, and a grant from the Canadian Space Agency. The SPIRALE balloon measurements could only be performed thanks to the technical team (L. Pomathiod, B. Gaubicher, G. Jannet); the flight was funded by ESA and CNES for the Envisat validation project; the CNES balloon launching team is greatly acknowledged for successful operations. The IAA team was supported by the Spanish project ESP2004-01556 and EC FEDER funds. The elements of the research described in this publication carried out at the Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, were under a contract with the National Aeronautics and Space Administration. The National Center for Atmospheric Research

is sponsored by the National Science Foundation and operated by the University Corporation for Atmospheric Research. The NCAR FTIR observation program at Thule, GR is supported under contract by the National Aeronautics and Space Administration (NASA).

Edited by: T. Wagner

References

- Barret, B., De Mazière, M., and Mahieu, E.: Ground-based FTIR measurements of CO from the Jungfraujoch: characterisation and comparison with in situ surface and MOPITT data, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2217–2223, 2003, <http://www.atmos-chem-phys.net/3/2217/2003/>.
- Barret, B., Ricaud, P., Santee, M. L., Attie, J. L., Urban, J., Le Flochmoën, E., Berthet, G., Murtagh, D., Eriksson, P., Jones, A., De La Noë, J., Dupuy, E., Froidevaux, L., Livesey, N. J., Waters, J. W., and Filipiak, M. J.: Intercomparisons of trace gases profiles from the Odin/SMR and Aura/MLS limb sounders, *J. Geophys. Res.*, 111, D21302, doi:10.1029/2006JD007305, 2006.
- Beer, R.: TES on the Aura mission: scientific objectives, measurements, and analysis overview, *IEEE T. Geosci. Remote*, 44, 1102–1105, 2006.
- Bernath, P. F., McElroy, C. T., Abrams, M. C., Boone, C. D., Butler, M., Camy-Peyret, C., Carleer, M., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Colin, R., DeCola, P., De Mazière, M., Drummond, J. R., Dufour, D., Evans, W. F. J., Fast, H., Fussen, D., Gilbert, K., Jennings, D. E., Llewellyn, E. J., Lowe, R. P., Mahieu, E., McCounell, J. C., McHugh, M., McLeod, S. D., Midwinter, C., Nassar, R., Nichitiu, F., Nowlan, C., Rinsland, C. P., Rochon, Y. J., Rowlands, N., Semeniuk, K., Simon, P., Skelton, R., Sloan, J. J., Soucy, M.-A., Strong, K., Tremblay, P., Turnbull, D., Walker, K. A., Walkty, I., Wardle, D. A., Wehrle, V., Zander, R., and Zou, J.: Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): mission overview, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L15S01, doi:10.1029/2005GL022386, 2005.
- Blumenstock, T., Kopp, G., Hase, F., Hochschild, G., Mikuteit, S., Raffalski, U., and Ruhnke, R.: Observation of unusual chlorine activation by ground-based infrared and microwave spectroscopy in the late Arctic winter 2000/01, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 897–905, 2006.
- Boone, C. D., Nassar, R., Walker, K. A., Rochon, Y., McLeod, S. D., Rinsland, C. P., and Bernath, P. F.: Retrievals for the Atmospheric Chemistry Experiment Fourier Transform Spectrometer, *Appl. Optics*, 44, 7218–7231, 2005.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Payan, S., Camy-Peyret, C., Wang, J., Edwards, D., and Luo, M.: Retrieval of CO from nadir remote-sensing measurements in the infrared by use of four different inversion algorithms, *Appl. Optics*, 41, 33, 7068–7078, 2002.
- Clerbaux, C., Gille, J., and Edwards, D.: New Directions: Infrared measurements of atmospheric pollution from space, *Atmos. Environ.*, 38, 27, 4599–4601, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.05.005, 2004.
- Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Barret, B., Carleer, M., Colin, R., Semeniuk, K., McConnell, J. C., Boone, C., and Bernath, P.: Carbon monoxide distribution from the ACE-FTS solar occultation measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L16S01, doi:10.1029/2005GL022394, 2005.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Turquety, S., George, M., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Wespes, C., Herbin, H., Blumstein, D., Tournier, B., and Phulpin, T.: The IASI/MetOp mission: first observations and highlight of its potential contribution to the GMES Earth observation component, *Space Research Today (COSPAR Inf. Bul.)*, 168, 19–24, 2007.
- Clerbaux, C., Edwards, D. P., Deeter, M., Emmons, L., Lamarque, J.-F., Tie, X. X., Massie, S. T., and Gille, J.: Carbon monoxide pollution from cities and urban areas observed by the Terra/MOPITT mission, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03817, doi:10.1029/2007GL032300, 2008.
- Coheur, P.-F., Herbin, H., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Wespes, C., Carleer, M., Turquety, S., Rinsland, C. P., Remedios, J., Hauglustaine, D., Boone, C. D., and Bernath, P. F.: ACE-FTS observation of a young biomass burning plume: first reported measurements of C₂H₄, C₃H₆O, H₂CO and PAN by infrared occultation from space, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5437–5446, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/5437/2007/>.
- Deeter, M. N., Emmons, L. K., Francis, G. L., Edwards, D. P., Gille, J. C., Warner, J. X., Khattatov, B., Ziskin, D., Lamarque, J.-F., Ho, S.-P., Yudin, V., Attié, J.-L., Packman, D., Chen, J., Mao, D., and Drummond, J. R.: Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4399, doi:10.1029/2002JD003186, 2003.
- Deeter, M. N., Emmons, L. K., Edwards, D. P., Gille, J. C., and Drummond, J. R.: Vertical resolution and information content of CO profiles retrieved by MOPITT, *Geophys. Res. Lett.*, 31, 15, L15112, doi:10.1029/2004GL020235, 2004.
- de Zafra, R. L. and Muscari, G.: CO as an important high-altitude tracer of dynamics in the polar stratosphere and mesosphere, *J. Geophys. Res.*, 109, D06105, doi:10.1029/2003JD004099, 2004.
- Dils, B., De Mazière, M., Müller, J. F., Blumenstock, T., Buchwitz, M., de Beek, R., Demoulin, P., Duchatelet, P., Fast, H., Frankenberg, C., Gloudemans, A., Griffith, D., Jones, N., Kerzeumacher, T., Kramer, I., Mahieu, E., Mellqvist, J., Mittermeier, R. L., Notholt, J., Rinsland, C. P., Schrijver, H., Smale, D., Strandberg, A., Straume, A. G., Stremme, W., Strong, K., Sussmann, R., Taylor, J., van den Broek, M., Velasco, V., Wagner, T., Warneke, T., Wiacek, A., and Wood, S.: Comparisons between SCIAMACHY and ground-based FTIR data for total columns of CO, CH₄, CO₂ and N₂O, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1953–1976, 2006, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/1953/2006/>.
- Dnfour, G., Szopa, S., Hauglustaine, D. A., Boone, C. D., Rinsland, C. P., and Bernath, P. F.: The influence of biogenic emissions on upper-tropospheric methanol as revealed from space, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 6119–6129, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/6119/2007/>.
- Dupuy, E., Urban, J., Ricaud, P., Le Flochmoën, E., Lautié, N., Murtagh, D., de la Noë, J., El Amraoui, L., Eriksson, P., Forkman, P., Frisk, U., Jégou, F., Jiménez, C., and Olberg, M.: Stratospheric measurements of carbon monoxide with the Odin Sub-Millimetre Radiometer: Retrieval and first results, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L20101, doi:10.1029/2004GL020558, 2004.
- Edwards, D. P., Emmons, L. K., Hauglustaine, D. A., Chu, A., Gille, J. C., Kanfman, Y. J., Pétron, G., Yurganov, L. N., Giglio, L., Deeter, M. N., Yudin, V., Ziskin, D. C., Warner, J., Lamarque, J.-F., Francis, G. L., Ho, S. P., Mao, D., Chan, J., and Drummond, J. R.: Observations of Carbon Monoxide and Aerosol From the Terra Satellite: Northern Hemisphere Variability, *J. Geophys.*

- Res., 109, D24202, doi:10.1029/2004JD004727, 2004.
- Edwards, D. P., Emmons, L. K., Gille, J. C., Chu, A., Attié, J.-L., Giglio, L., Wood, S. W., Haywood, J., Deeter, M. N., Massie, S. T., Ziskin, D. C., and Drummond, J. R.: Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 111, D14312, doi:10.1029/2005JD006655, 2006.
- Emmons, L. K., Deeter, M. N., Gille, J. C., Edwards, D. P., Attié, J.-L., Warner, J., Ziskin, D., Francis, G., Khattatov, B., Yudin, V., Lamarque, J.-F., Ho, S.-P., Mao, D., Chen, J. S., Drummond, J., Novelli, P., Sachse, G., Coffey, M. T., Hannigan, J. W., Gerbig, C., Kawakami, S., Kondo, Y., Takegawa, N., Schlager, H., Baehr, J., and Ziereis, H.: Validation of Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) CO retrievals with aircraft in situ profiles, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 109, D03309, doi:10.1029/2003JD004101, 2004.
- Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Jiang, J. H., Li, Q., Livesey, N. J., Manney, G. L., Read, W. G., Schwartz, M. J., Waters, J. W., and Wu, D. L.: Carbon monoxide measured by EOS MLS on Aura: First results, *Geophys. Res. Lett.*, 32, 14, L14825, doi:10.1029/2005GL022765, 2005.
- Fischer, H., Birk, M., Blom, C., Carli, B., Carlotti, M., von Clarmann, T., Delbouille, L., Dudhia, A., Ehrt, D., Endemann, M., Flaud, J. M., Gessner, R., Kleinert, A., Koopman, R., Langen, J., López-Puertas, M., Mosner, P., Nett, H., Oelhaf, H., Perron, G., Remedios, J., Ridolfi, M., Stiller, G., and Zander, R.: MIPAS: an instrument for atmospheric and climate research, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2151–2188, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/2151/2008/>.
- Folkins, I., Bernath, P., Boone, C., Lesins, G., Livesey, N., Thompson, A. M., Walker, K., and Witte, J. C.: Seasonal cycles of O₃, CO, and convective outflow at the tropical tropopause, *Geophys. Res. Lett.*, 33, 16, L16802, doi:10.1029/2006GL026602, 2006.
- Frankenberg, C., Platt, U., and Wagner, T.: Retrieval of CO from SCIAMACHY onboard ENVISAT: detection of strongly polluted areas and seasonal patterns in global CO abundances, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1639–1644, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1639/2005/>.
- Frisk, U., Hagström, M., Ala-Laurinaho, J., Andersson, S., Berges, J.-C., Chabaud, J.-P., Dahlgren, M., Emrich, A., Florén, H.-G., Florin, G., Fredrixon, M., Gaier, T., Haas, R., Hirvonen, T., Hjalmarsson, Å., Jakobsson, B., Jukkala, P., Kildal, P. S., Kollberg, E., Lassing, J., Lecacheux, A., Lehtinen, P., Lehto, A., Mallat, J., Marty, C., Michet, D., Narbonne, J., Nexon, M., Olberg, M., Olofsson, O. H., Olofsson, G., Origné, A., Petersson, M., Piironen, P., Pons, R., Pouliquen, D., Ristocelli, I., Rosolen, C., Rouaix, G., Räisänen, A. V., Serra, G., Sjöberg, G., Stenmark, L., Torchinsky, S., Tuovinen, J., Ullberg, C., Vinterhav, E., Wadefalk, N., Zirath, H., Zimmermann, P., and Zimmermann, R.: The Odin satellite – I. Radiometer design and test, *Astron. Astrophys.*, 402, 3, 27–34, 2003.
- Froidevaux, L., Livesey, N. J., Read, W. G., Jiang, Y. B., Jimenez, C. J., Filipiak, M. J., Schwartz, M. J., Santee, M. L., Pumphrey, H. C., Jiang, J. H., Wu, D. L., Manney, G. L., Drouin, B. J., Waters, J. W., Fetzer, E. J., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Jucks, K. W., Toon, G. C., Margitan, J. J., Sen, B., Webster, C. R., Christensen, L. E., Elkins, J. W., Atlas, E., Lueb, R. A., and Hendershot, R.: Early validation analyses of atmospheric profiles from EOS MLS on the Aura satellite, *IEEE T. Geosci. Remote.*, 44, 5, 2006.
- Funke, B., López-Puertas, M., Bernejo-Pantaleón, D., von Clarmann, T., Stiller, G. P., Höpfner, M., Grabowski, U., and Kaufmann, M.: Analysis of nonlocal thermodynamic equilibrium CO 4.7 μm fundamental, isotopic, and hot band emissions measured by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding on Envisat, *J. Geophys. Res.*, 112, D11305, doi:10.1029/2006JD007933, 2007.
- Goldman, A., Paton-Walsh, C., Bell, W., Toon, G. C., Blavier, J. F., Sen, B., Coffey, M. T., Hannigan, J. W., Mankin, W. G.: Network for the Detection of Stratospheric Change Fourier transform infrared intercomparison at Table Mountain Facility, November 1996, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104(D23), 30 481–30 503, 1999.
- Hase, F., Hannigan, J. W., Coffey, M. T., Goldman, A., Höpfner, M., Jones, N. J., Rinsland, C. P., and Wood, S. W.: Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 87, 25–52, 2004.
- Hauchecorne, A., Godin, S., Marchand, M., Heese, B., and Souprayen, C.: Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity, *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 8289, doi:10.1029/2001JD000491, 2002.
- Hegglin, M. I., Boone, C. D., Manney, G. L., Shepherd, T. G., Walker, K. A., Bernath, P. F., Daffer, W. H., Hoor, P., and Schiller, C.: Validation of ACE-FTS satellite data in the upper troposphere/lower stratosphere (UTLS) using non-coincident measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 1483–1499, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/1483/2008/>.
- Jin, J. J., Semeniuk, K., Jonsson, A. I., Beagley, S. R., McConnell, J. C., Boone, C. D., Walker, K. A., Bernath, P. F., Rinsland, C. P., Dupuy, E., Ricaud, P., de La Noë, J., Urban, J., and Murtagh, D.: Co-located ACE-FTS and Odin/SMR stratospheric-mesospheric CO 2004 measurements and comparison with a GCM, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L15S03, doi:10.1029/2005GL022433, 2005.
- Jones, N. B., Kasai, Y., Dupuy, E., Murayama, Y., Barret, B., Sinnhuber, M., Kagawa, A., Koshiro, T., Urban, J., Ricaud, P., and Murtagh, D.: Stratospheric CO measured by a ground-based Fourier Transform Spectrometer over Poker Flat, Alaska: Comparisons with Odin/SMR and a 2-D model, *J. Geophys. Res.*, 112, D20303, doi:10.1029/2006JD007916, 2007.
- Kasai, Y. J., Kagawa, A., Jones, N., Fujiwara, A., Seki, K., Murayama, Y., and Murcray, F.: Seasonal Variations of CO and HCN in the Troposphere Measured by Solar Absorption Spectroscopy Over Poker Flat, Alaska, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L19812, doi:10.1029/2005GL022826, 2005a.
- Kasai, Y. J., Koshiro, T., Endo, M., Jones, N. B., and Murayama, Y.: Ground-based measurement of strato-mesospheric CO by a FTIR spectrometer over Poker Flat, Alaska, *Adv. Space. Res.*, 35(11), 2024–2030, doi:10.1016/j.asr.2005.04.099, 2005b.
- Kurylo, M. J.: Network for the detection of stratospheric change (NDSC), *Proceedings of SPIE The International Society for Optical Engineering, Remote Sensing of Atmospheric Chemistry*, 1491, 168–174, 1991.
- Livesey, N. J., Snyder, W. V., Read, W. R., and Wagner, P. A.: Retrieval algorithms for the EOS Microwave Limb Sounder (MLS) instrument, *IEEE T. Geosci. Remote.*, 44, 5, 1144–1155, 2006.
- Livesey, N. J., Filipiak, M. J., Froidevaux, L., Read, W. R., Lambert, A., Santee, M. L., Jiang, J. H., Pumphrey, H. C., Waters, J. W.,

- Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Fuller, R. A., Jarnot, R. F., Jiang, Y. B., Knosp, B. W., Li, Q. B., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Wagner, P. A., Avery, M., Browell, E. V., Cammas, J. P., Christensen, L. E., Diskin, G. S., Loewenstein, M., Lopez, J. D., Nedelec, P., Osterman, G. B., Sachse, G. W., and Webster, C. R.: Validation of Aura Microwave Limb Sounder O₃ and CO observations in the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S02, doi:10.1029/2007JD008805, 2008.
- Logan, J., Prather, M. J., Wofsy, S. C., and McElroy, M. B.: Tropospheric chemistry: A global perspective, *J. Geophys. Res.*, 86, 7210–7254, 1981.
- Luo, M., Rinsland, C. P., Rodgers, C. D., Logan, J. A., Worden, H., Kulawik, S., Eldering, A., Goldman, A., Shephard, M. W., Gunson, M., and Lampel, M.: Comparison of carbon monoxide measurements by TES and MOPITT: Influence of a priori data and instrument characteristics on nadir atmospheric species retrievals, *J. Geophys. Res.*, 112, D09303, doi:10.1029/2006JD007663, 2007a.
- Luo, M., Rinsland, C., Fisher, B., Sachse, G., Diskin, G., Logan, J., Worden, H., Kulawik, S., Osterman, G., Eldering, A., Herman, R., and Shephard, M.: TES carbon monoxide validation with DACOM aircraft measurements during INTEX-B 2006, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S48, doi:10.1029/2007JD008803, 2007b.
- Manney, G. L., Daffer, W. H., Strawbridge, K. B., Walker, K. A., Boone, C. D., Bernath, P. F., Kerzbaumacher, T., Schwartz, M. J., Strong, K., Sica, R. J., Krüger, K., Pumphrey, H. C., Froidevaux, L., Lambert, A., Santee, M. L., Livesey, N. J., Remsberg, E. E., Mlyneczek, M. G., and Russell III, J. R.: The high Arctic in extreme winters: vortex, temperature, and MLS and ACE-FTS trace gas evolution, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 505–522, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/505/2008/>.
- Marengo, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poschmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T.: Measurement of ozone and water vapour by Airbus in-service aircraft: The MOZAIC airborne program, An overview, *J. Geophys. Res.*, 103, D19, 25 631–25 642, 1998.
- Moreau, G., Robert, C., Catoire, V., Chartier, M., Camy-Peyret, C., Huret, N., Pirre, M., Pomathiod, L., and Chalumeau, G.: SPIRALE: a multispecies in situ balloon-borne instrument with six tunable diode laser spectrometers, *Appl. Optics*, 44, 28, 5972–5989, 2005.
- Murtagh, D. P., Frisk, U., Merino, F., Ridal, M., Jonsson, A., Stegman, J., Witt, G., Eriksson, P., Jiménez, C., Mégie, G., de la Noë, J., Ricaud, P., Baron, P., Pardo, J. R., Hauchecorne, A., Llewellyn, E. J., Degenstein, D. A., Gattinger, R. L., Lloyd, N. D., Evans, W. F. J., McDade, I. C., Haley, C. S., Sioris, C., von Savigny, C., Solheim, B. H., McCounell, J. C., Strong, K., Richardson, E. H., Leppelmeier, G. W., Kyrölä, E., Auvinen, H., and Oikarinen, L.: An overview of the Odin atmospheric mission, *Can. J. Phys.*, 80, 309–319, 2002.
- Nedelec, P., Cammas, J. P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J. M., Legrand, C., Abouneel, C., Lecoœur, F., Cayez, G., and Marizy, C.: An improved infra-red carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: Technical validation and first scientific results of the MOZAIC III program, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1551–1564, 2003, <http://www.atmos-chem-phys.net/3/1551/2003/>.
- Nedelec, P., Thouret, V., Brioude, J., Sauvage, B., Cammas, J.-P., and Stohl, A.: Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L14807, doi:10.1029/2005GL023141, 2005.
- Notholt, J., Kuang, Z., Rinsland, C. P., Toon, G. C., Rex, M., Jones, N., Albrecht, T., Deckelmann, H., Krieg, J., Weinzierl, C., Binger, H., Weller, R., Schrems, O., Science, 300, 307–310, 2003.
- Park, M., Randel, W. J., Emmons, L. K., Bernath, P. F., Walker, K. A., and Boone, C. D.: Chemical isolation in the Asian monsoon anticyclone observed in Atmospheric Chemistry Experiment (ACE-FTS) data, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 757–764, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/757/2008/>.
- Paton-Walsh, C., Bell, W., Gardiner, T., Swann, N., Woods, P., Notholt, J., Schutt, H., Galle, B., Arlander, W., and Mellqvist, J.: An uncertainty budget for ground-based Fourier transform infrared column measurements of HCl, HF, N₂O, and HNO₃, deduced from results of side-by-side instrument intercomparisons, *J. Geophys. Res.*, 102, 867–887, 1997.
- Pougatchev, N. S. and Rinsland, C. P.: Spectroscopic study of the seasonal variation of carbon monoxide vertical distribution above Kitt Peak, *J. Geophys. Res.*, 100, 1409–1416, 1995.
- Pumphrey, H. C., Filipiak, M. J., Livesey, N. J., Schwartz, M. J., Boone, C., Walker, K. A., Bernath, P., Ricaud, P., Barret, B., Clerbaux, C., Jarnot, R. F., Manney, G. L., and Waters, J. W.: Validation of middle-atmosphere carbon monoxide retrievals from Microwave Limb Sounder on Aura, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S38, doi:10.1029/2007JD008723, 2007.
- Ricaud, P., Barret, B., Attié, J.-L., Le Flochmoën, E., Motte, E., Teysseire, H., Peuch, V.-H., Livesey, N., Lambert, A., Pommereau, J.-P.: Impact of land convection on troposphere-stratosphere exchange in the tropics, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5639–5657, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/5639/2007/>.
- Rinsland, C. P., Jones, N. B., Connor, B. J., Logan, J. A., Pougatchev, N. S., Goldman, A., Murcray, F. J., Stephen, T. M., Pine, A. S., Zander, R., Mahieu, E., and Demoulin, P.: Northern and southern hemisphere ground-based infrared spectroscopic measurements of tropospheric carbon monoxide and ethane, *J. Geophys. Res.*, 103, 28 197–28 217, 1998.
- Rinsland, C. P., Mahieu, E., Zander, R., Demoulin, P., Forrer, J., and Buchmann, B.: Free tropospheric CO, C₂H₆ and HCN above central Europe: recent measurements from the Jungfraujoch station including the detection of elevated columns during 1998, *J. Geophys. Res.*, 105, 24 235–24 249, 2000.
- Rinsland, C. P., Dufour, G., Boone, C. D., Bernath, P. F., and Chiou, L.: Atmospheric Chemistry Experiment (ACE) measurements of elevated Southern Hemisphere upper tropospheric CO, C₂H₆, HCN, and C₂H₂ mixing ratios from biomass burning emissions and long-range transport, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L20803, doi:10.1029/2005GL024214, 2005.
- Rinsland, C. P., Luo, M., Logan, J. A., Beer, R., Worden, H., Kulawik, S. S., Rider, D., Osterman, G., Gunson, M., Eldering, A., Goldman, A., Shephard, M., Clough, S. A., Rodgers, C., Lampel, M., and Chiou, L.: Nadir measurements of carbon monoxide (CO) distributions by the tropospheric emission spectrometer instrument onboard the Aura spacecraft: Overview of analysis approach and examples of initial results, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L22806, doi:10.1029/2006GL027000, 2006a.

- Rinsland, C. P., Boone, C. D., Bernath, P. F., Mahieu, E., Zander, R., Dufour, G., Clerbaux, C., Turquety, S., Chiou, L., McCounell, J. C., Neary, L., and Kaminski, J. W.: First space-based observations of formic acid (HCOOH): Atmospheric Chemistry Experiment austral spring 2004 and 2005 Southern Hemisphere tropical-mid-latitude upper tropospheric measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L23804, doi:10.1029/2006GL027128, 2006b.
- Rinsland, C. P., Coheur, P. F., Herbin, H., Clerbaux, C., Boone, C., Bernath, P., and Chiou, L. S.: Detection of elevated tropospheric H₂O₂ (hydrogen peroxide) mixing ratios in ACE (atmospheric chemistry experiment) subtropical infrared solar occultation spectra, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 107(2), 340–348, doi:10.1016/j.jqsrt.2007.02.009, 2007a.
- Rinsland, C. P., Dufour, G., Boone, C. D., Bernath, P. F., Chiou, L., Coheur, P.-F., Turquety, S., and Clerbaux, C.: Satellite boreal measurements over Alaska and Canada during June–July 2004: Simultaneous measurements of upper tropospheric CO, C₂H₆, HCN, CH₃Cl, CH₄, C₂H₂, CH₃OH, HCOOH, OCS, and SF₆ mixing ratios, *Global Biogeochem. Cy.*, 21, GB3008, doi:10.1029/2006GB002795, 2007b.
- Rinsland, C. P., Luo, M., Shephard, M. W., Clerbaux, C., Boone, C. D., Bernath, P. F., Chiou, L. S., and Coheur, P.-F.: Tropospheric Emission Spectrometer (TES) and Atmospheric Chemistry Experiment (ACE) measurements of tropospheric chemistry in tropical southeast Asia during a moderate El Niño, in 2006, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, in press, doi:10.1016/j.jqsrt.2007.12.020, 2008.
- Rodgers, C. D.: Inverse methods for atmospheric sounding : theory and practice, *Ser. Atmos. Oceanic Planet. Phys.*, 2, World Sci., Hackensack, N. J., 2000.
- Rodgers, C. D. and Counor, B. J.: Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4116, doi:10.1029/2002JD002299, 2003.
- Rothman, L. S., Jacquemart, D., Barbe, A., Beuner, D. C., Birk, M., Brown, Jr. L. R., Chackerian, C., Chance, K., Coudert, L. H., Carleer, M. R., Dana, V., Devi, V. M., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Hartmann, J.-M., Jucks, K. W., Maki, A. G., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Orphal, J., Perrin, A., Rinsland, C. P., Smith, M. A. H., Tennyson, J., Tolchenov, R. N., Toth, R. A., Vander Auwera, J., Varanasi, P., and Wagner, G.: The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. Rad.*, 96, 139–204, 2005.
- Schneider, M., Blumenstock, T., Chipperfield, M., Hase, F., Kouker, W., Reddmann, T., Ruhnke, R., Cuevas, E., and Fischer, H.: Subtropical trace gas profiles determined by ground-based FTIR spectroscopy at Izaña (28° N, 16° W): Five year record, error analysis, and comparison with 3D-CTMs, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 153–167, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/153/2005/>.
- Schoeberl, M. R., Douglass, A. R., Hilsenrath, E., Bhartia, P. K., Barnett, J., Beer, R., Waters, J., Gunson, M., Froidevaux, L., Gille, J., Levelt, P. F., and DeCola, P.: Overview of the EOS Aura mission, *IEEE T. Geosci. Remote*, 44, 5, 1066–1074, 2006.
- Senten, C., De Mazière, M., Dils, B., Hermans, C., Kruglanski, M., Neefs, E., Scolas, F., Vandaele, A. C., Vanhaelewyn, G., Vigouroux, C., Carleer, M., Coheur, P. F., Fally, S., Barret, B., Baray, J. L., Delmas, R., Leveau, J., Metzger, J. M., Mahieu, E., Boone, C., Walker, K. A., Bernath, P. F., and Strong, K.: Technical Note: New ground-based FTIR measurements at Ile de La Réunion: observations, error analysis, and comparisons with independent data, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 827–891, 2008, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/8/827/2008/>.
- Solomon, S., Garcia, R. R., Olivero, J. J., Bevilacqua, R. M., Schwartz, P. R., Clancy, R. T., and Muhleman, D. O.: Photochemistry and transport of carbon monoxide in the middle atmosphere, *J. Atmos. Sci.*, 42, 1072–1083, 1985.
- Sussmann, R. and Buchwitz M.: Initial validation of ENVISAT/SCIAMACHY columnar CO by FTIR profile retrievals at the Ground-Truthing Station Zugspitze, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1497–1503, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1497/2005/>.
- Sussmann, R. and Borsdorff, T.: Technical note: Interference errors in infrared remote sounding of the atmosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3537–3557, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/3537/2007/>.
- Thouret, V., Marenco, A., Logan, J. A., Nédélec, P., and Grouhel C.: Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations, *J. Geophys. Res.*, 103(D19), 25695–25720, 1998.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Hauglustaine, D. A., Clough, S. A., Cassé, V., Schlüssel, P., and Mégie, G.: Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, *J. Geophys. Res.*, 109, D21301, doi:10.1029/2004JD004821, 2004.
- Turquety, S., Clerbaux, C., Law, K., Coheur, P.-F., Cozic, A., Szopa, S., Hauglustaine, D. A., Hadji-Lazaro, J., Gloudemans, A. M. S., Schrijver, H., Boone, C. D., Bernath, P. F., and Edwards, D. P.: CO emission and export from Asia: an analysis combining complementary satellite measurements (MOPITT, SCIAMACHY and ACE-FTS) with global modeling, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 1709–1755, 2008, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/8/1709/2008/>.
- Velazco, V., Wood, S. W., Sinnhuber, M., Kramer, I., Jones, N. B., Kasai, Y., Notholt, J., Warneke, T., Blumenstock, T., Hase, F., Murcray, F. J., and Schrems, O.: Annual variation and global distribution of strato-mesospheric carbon monoxide measured by ground-based Fourier transform infrared spectroscopy, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1305–1312, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/1305/2007/>.
- von Clarmann, T., Glatthor, N., Grabowski, U., Höpfner, M., Kellmann, S., Kiefer, M., Linden, A., Mengistu Tsidu, G., Milz, M., Steck, T., Stiller, G. P., Wang, D. Y., Fischer, H., Funke, B., Gil-López, S., and López-Puertas, M.: Retrieval of temperature and tangent altitude pointing from limb emission spectra recorded from space by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *J. Geophys. Res.*, 108, 4736, doi:10.1029/2003JD003602, 2003.
- Warner, J., McCourt Comer, M., Barnet, C. D., McMillan, W. W., Wolf, W., Maddy, E., and Sachse, G.: A comparison of satellite tropospheric carbon monoxide measurements from AIRS and MOPITT during INTEx-A, *J. Geophys. Res.*, 112, D12S17, doi:10.1029/2006JD007925, 2007.
- Waters, J. W.: The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOS MLS) on the Aura satellite, *IEEE T. Geosci. Remote*, 44, 5, 1106–1121, 2006.
- Wiacek, A., Taylor, J. R., Strong, K., Saari, R., Kerzeumacher, T., Jones, N. B., and Griffith, D. W. T.: Ground-Based Solar Absorption FTIR Spectroscopy: Characterization of Retrievals and

- First Results from a Novel Optical Design Instrument at a New NDACC Complementary Station., *J. Atmos. Oceanic Technology*, 24, 3, 432–448, 2007.
- Yurganov, L. N., Blumenstock, T., Grechko, E. I., Hase, F., Hyer, E. J., Kasischke, E. S., Koike, M., Kondo, Y., Kramer, I., Leung, F.-Y., Mahieu, E., Mellqvist, J., Notholt, J., Novelli, P. C., Rinsland, C. P., Scheel, H. E., Schulz, A., Strandberg, A., Sussmann, R., Tanimoto, H., Velazco, V., Zander, R., Zhao, Y.: A quantitative assessment of the 1998 carbon monoxide emission anomaly in the Northern Hemisphere based on total column and surface concentration measurements, *J. Geophys. Res.*, 109(D15), D15305, 2004.
- Yurganov, L. N., Duchatelet, P., Dzhola, A. V., Edwards, D. P., Hase, F., Kramer, I., Mahieu, E., Mellqvist, J., Notholt, J., Novelli, P. C., Scheel, H.-E., Schneider, M., Schulz, A., Strandberg, A., Sussmann, R., Tanimoto, H., Velazco, V., Drummond, J. R., and Gille, J. C.: Increased Northern Hemispheric CO burden in the troposphere in 2002 and 2003 detected from the ground and from a satellite, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 563–573, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/563/2005/>.

Chapitre 4: Le CO mesuré par la mission IASI

Dans ce chapitre nous allons d'abord décrire 6 ans de données FORLI-CO, sous forme de distributions globales, de coupe latitudinale, et à plus petite échelle (au-dessus de régions), sous forme de séries temporelles de valeurs moyennes dans des boîtes de $5^\circ \times 5^\circ$ ou $2^\circ \times 2^\circ$ (colonnes totales et profils moyens). Ensuite nous présenterons l'article de validation des données FORLI-CO que j'ai écrit en 2009, où les colonnes totales CO de IASI sont évaluées par comparaison avec les produits CO d'autres instruments IR embarqués à bord de satellites. Les résultats de validation qui ont été publiés suite à l'article (lors de campagnes de mesures, utilisant des mesures sol ou avion) sont exposés ensuite. Enfin, dans la section 4.3, nous présenterons des résultats issus de publications qui utilisent les données FORLI-CO. J'ai choisi de ne présenter ici que des publications dont je suis co-auteur, où j'ai fourni les données FORLI-CO et apporté une expertise sur les produits.

4.1 Six ans de données IASI

L'instrument IASI et la mission MetOp ont été présentés dans la section 2.1. Un résumé des caractéristiques de l'instrument et du satellite est présenté dans la Table 2.1. A partir des observations fournies par le sondeur IASI, des variables météorologiques (profils de température et d'humidité) mais également les concentrations d'espèces atmosphériques sont restituées. A ce jour, 25 espèces peuvent être détectées dans les mesures IASI (Clarisse et al., 2011c).

MetOp-A a été lancé en octobre 2006 et les premières mesures de CO sont disponibles depuis octobre 2007. Le second modèle de IASI a été lancé en septembre 2012 à bord de MetOp-B et les mesures de CO associées sont disponibles depuis mars 2013.

4.1.1 Les données FORLI-CO

Les données FORLI-CO sont générées au LATMOS ainsi qu'à l'ULB (cf. section 2.3 pour la description de l'algorithme FORLI). Les deux laboratoires (le LATMOS par l'intermédiaire

de l'IPSL) sont équipés d'antennes pour réceptionner les spectres IASI et les données de niveau 2 (température, humidité, nuages, etc.) et de clusters de PC pour traiter ces données en temps quasi-réel, 3 h environ après acquisition. Le code FORLI est amélioré avec le temps, tant d'un point de vue performance (vitesse de traitement, en fonction des clusters de calculs disponibles) que d'un point de vue scientifique (suite aux conclusions des exercices de validation).

Des exemples de distributions de colonnes totales de CO sont donnés sur la Fig. 4.1: pour une journée (15 avril 2013), 3 journées moyennées (15, 16 et 17 avril 2013) et pour le mois d'avril 2013. Les données « jour » (angle zénithal solaire associé à chaque observation inférieur à 90°) sont représentées dans la colonne de gauche et les données « nuit » (angle zénithal solaire supérieur ou égal à 90°) dans la colonne de droite. On peut noter tout d'abord la présence des nuages sur les cartes 1 journée et 3 journées : on voit des zones sans données. Les cartes mensuelles (moyenne des données sur tout le mois) ne montrent pas de zones sans données dues aux nuages. Les différences entre les données jour et les données nuit sont représentées en bas ($100 \times (\text{jour-nuit}/\text{nuit})$) pour les cartes mensuelles. Les zones en rouge montrent les régions où les concentrations de jour sont plus élevées que les concentrations de nuit : au-dessus des terres/continents (cf. Annexe D, pour les différences jour/nuit des autres mois de l'année 2013). Le jour, l'instrument IASI est plus sensible aux concentrations de CO dans les basses couches de l'atmosphère. Cela est dû à l'effet du contraste thermique (différence de température entre la surface de la Terre et la première couche de l'atmosphère, cf. Annexe E) qui induit une sensibilité verticale différente dans la mesure. Le jour, le contraste thermique est plus intense (au moins sur les terres, pas sur la mer) que la nuit et les DOFS sont plus élevés (Fig. 4.2) donc les données sont plus complètes. C'est la raison pour laquelle nous nous intéresserons principalement aux mesures jour dans la suite du manuscrit.

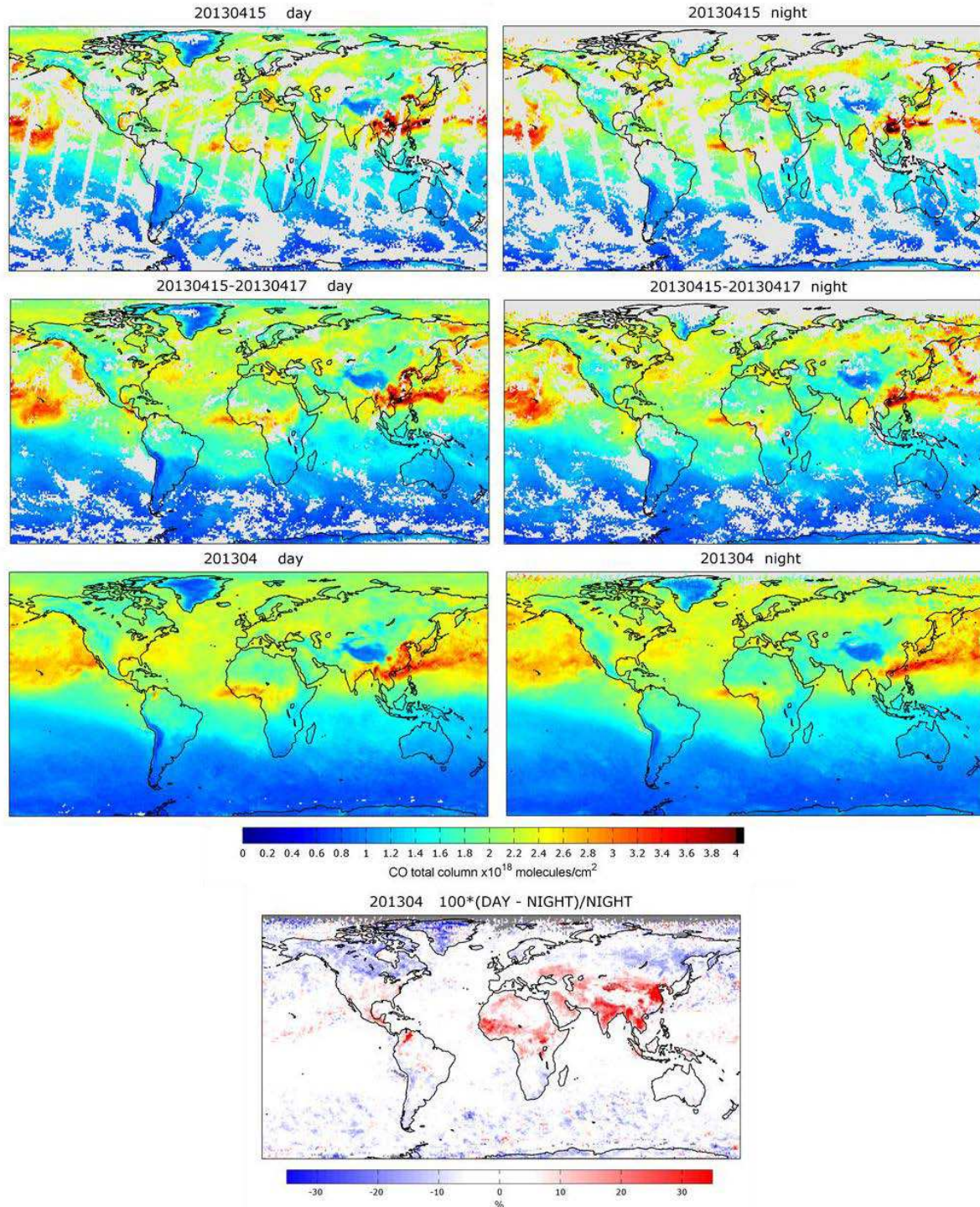


Fig. 4.1- Distributions de colonnes totales de CO restituées par FORLI pour une journée (le 15 avril 2013), 3 journées (du 15 au 17 avril 2013) et pour un mois (avril 2013), pour le jour (colonne de gauche) et la nuit (colonne de droite). Les zones sans données sont représentées en gris (présence de nuages ou zone non couverte par le satellite dans le cas des distributions journalières). Les données jour et nuit sont discriminées en fonction de l'angle zénithal du soleil (SZA pour Solar Zenithal Angle ; Jour : $SZA < 90^\circ$ et nuit : $SZA \geq 90^\circ$). La différence relative entre les données jour et les données nuit est représentée sur l'image du bas pour les distributions mensuelles.

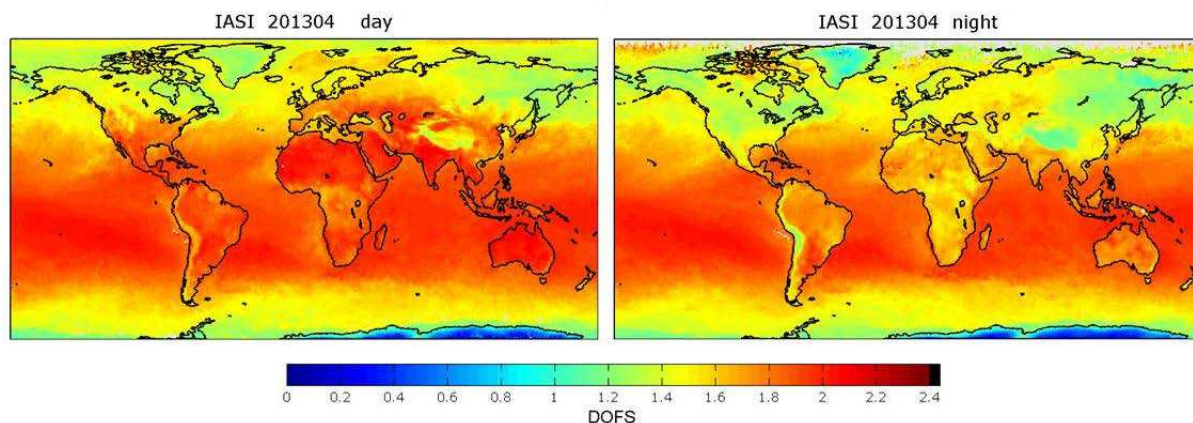


Fig. 4.2 - DOFS moyens pour le mois d'avril 2013 pour les données de jour (à gauche) et de nuit (à droite).

Des problèmes d'inversion au-dessus des surfaces désertiques et des surfaces de glace ont été identifiés dans George et al. (2009) (cf. section 4.2.2). Ils ont fait l'objet d'une étude approfondie et une nouvelle base de données des émissivités de surface a été choisie : la climatologie Zhou et al. (2011) a renforcé la climatologie MODIS/Terra utilisée seule jusque-là. Quand des données ne sont pas disponibles dans la climatologie de Zhou et al. (2011), celles de MODIS/Terra sont utilisées. Ainsi, une nouvelle version des données FORLI-CO a été générée : la v20100815. La correction des problèmes rencontrés au-dessus des régions spécifiques est visible sur la Fig. 4.3.

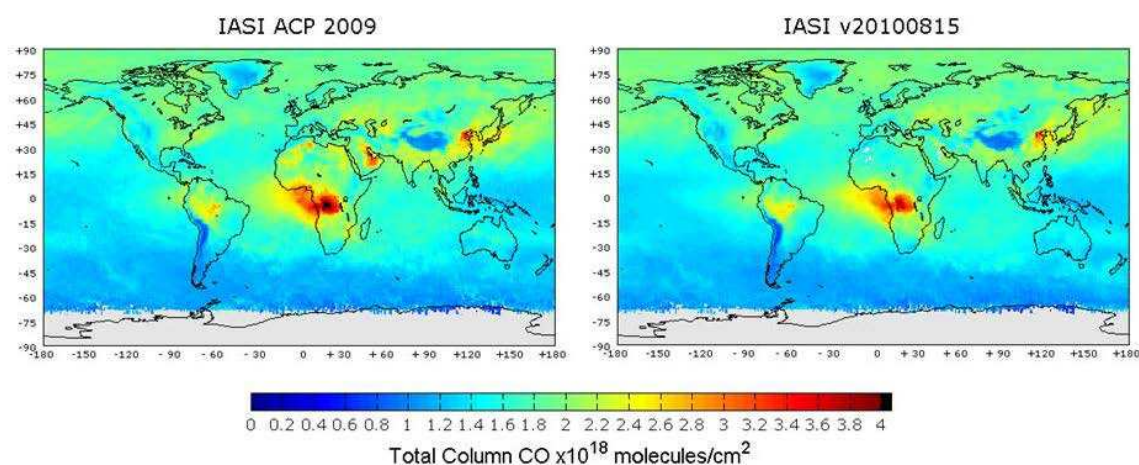


Fig. 4.3 - Colonnes totales de CO moyennées pour le mois d'août 2008, présentées dans l'article George et al. (2009) (à gauche) et après changement de la base d'émissivité dans le processus d'inversion (à droite). Les fortes concentrations (en jaune et rouge) irréalistes au-dessus des déserts d'Afrique du Nord et de la péninsule arabique ont quasiment disparu dans la dernière version de FORLI, la v20100815.

Sur la Fig. 4.4 adaptée de Hurtmans et al. (2012), on peut voir, pour la journée du 29 septembre 2009 et en séparant les données de jour et de nuit comme précédemment, la colonne totale de CO (v20100815), le résidu moyen (appelé biais, différence moyenne entre le spectre mesuré et le dernier spectre calculé dans le processus d'inversion) et le RMS du résidu (Root Mean Square, c'est-à-dire la racine carrée de la moyenne des carrés des différences entre le spectre mesuré et le dernier spectre calculé), l'erreur totale (erreur sur la mesure + erreur sur l'inversion) et enfin les DOFS. Le biais est généralement bas, compris entre $\pm 3 \times 10^{-10}$ W/(cm².cm⁻¹.sr). Le RMS varie, avec de fortes valeurs dans les tropiques, en particulier au-dessus de régions désertiques, pour les mesures de jour. Il est donc recommandé de filtrer les données et de ne conserver que celles pour lesquelles $\text{RMS} \leq 2.7 \times 10^{-9}$ W/(cm².cm⁻¹.sr) et $-0.15 \times 10^{-9} \leq \text{biais} \leq 0.25 \times 10^{-9}$ W/(cm².cm⁻¹.sr). Une fois les données filtrées, on obtient les cartes de colonnes totales, erreur totale et DOFS de la Fig. 4.4. L'erreur totale est généralement inférieure à 10-15% pour les latitudes équatoriales et moyennes et de 30% dans les régions polaires (cf. Annexe E où sont présentées les cartes d'erreur totale de chaque mois de l'année 2013, pour les mesures de jour et les mesures de nuit). Les DOFS sont généralement de 1-2. Les DOFS les plus élevés (>1.5) se trouvent dans la bande intertropicale, et dans les moyennes latitudes pour les mesures de jour. En présence d'un contraste thermique favorable, IASI est plus sensible aux concentrations de CO dans les couches proches de la surface de la Terre, d'où des DOFS plus élevés dans les régions qui bénéficient d'un fort ensoleillement comme la bande intertropicale (cf. Annexe G, où sont présentées les cartes de DOFS de chaque mois, moyennés sur les 6 années IASI, pour les mesures jour et les mesures nuit).

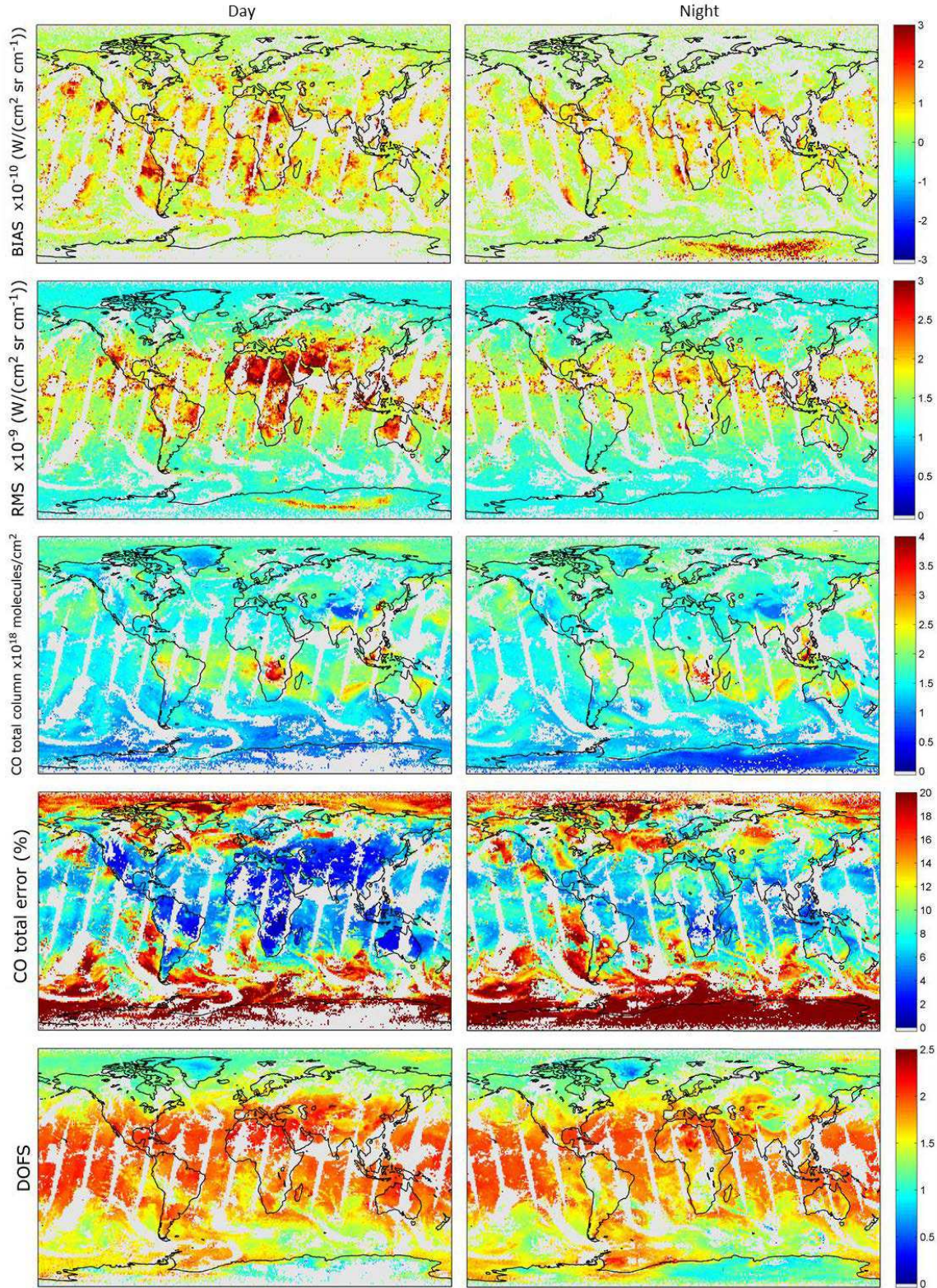


Fig. 4.4 - Performance de FORLI-CO pour le 29 septembre 2009, à gauche pour les orbites du matin et à droite pour les orbites du soir. De haut en bas : biais et RMS du résidu en $W/(cm^2.cm^{-1}.sr)$, colonnes totales (molécules/cm²), erreurs d'inversion sur la colonne totale (%) et DOFS. Les colonnes totales, erreurs et DOFS sont filtrés en fonction des biais et du RMS, seules les valeurs telles que: $-0.15 \times 10^{-9} \leq \text{biais} \leq 0.25 \times 10^{-9}$ and $RMS \leq 2.7 \times 10^{-9}$ (en $W/(cm^{-2}.sr.cm^{-1})$) étant conservées. Figure adaptée de Hurtmans et al. (2012).

4.1.2 Colonnes partielles et colonnes totales

Avec une majorité d'inversions avec des DOFS qui varient entre 1 et 2, la colonne totale est souvent la variable étudiée pour le CO, plus que le profil peu résolu. Cependant si on regarde les colonnes partielles 0-6 km et 6-12 km présentées sur la Fig. 4.5, les émissions de CO liées aux activités humaines, à l'est de l'Asie ainsi que celles liées aux feux de biomasse en Afrique ou en Amérique du Sud sont bien détectées dans les distributions de la colonne 0-6 km. Les concentrations sont moins élevées dans ces mêmes régions pour la colonne 6-12 km, ce qui montre que IASI est capable de distinguer les contributions de la basse et de la moyenne troposphère. On notera aussi que les maxima de la colonne partielle 0-6 km sont moins prononcés sur les cartes représentant les données nuit (colonne de droite). En effet IASI est moins sensible aux concentrations de CO aux altitudes proches de la surface pendant la nuit, quand la température de l'atmosphère et le contraste thermique diminuent. Enfin, le transport de CO associé à ces émissions est également visible.

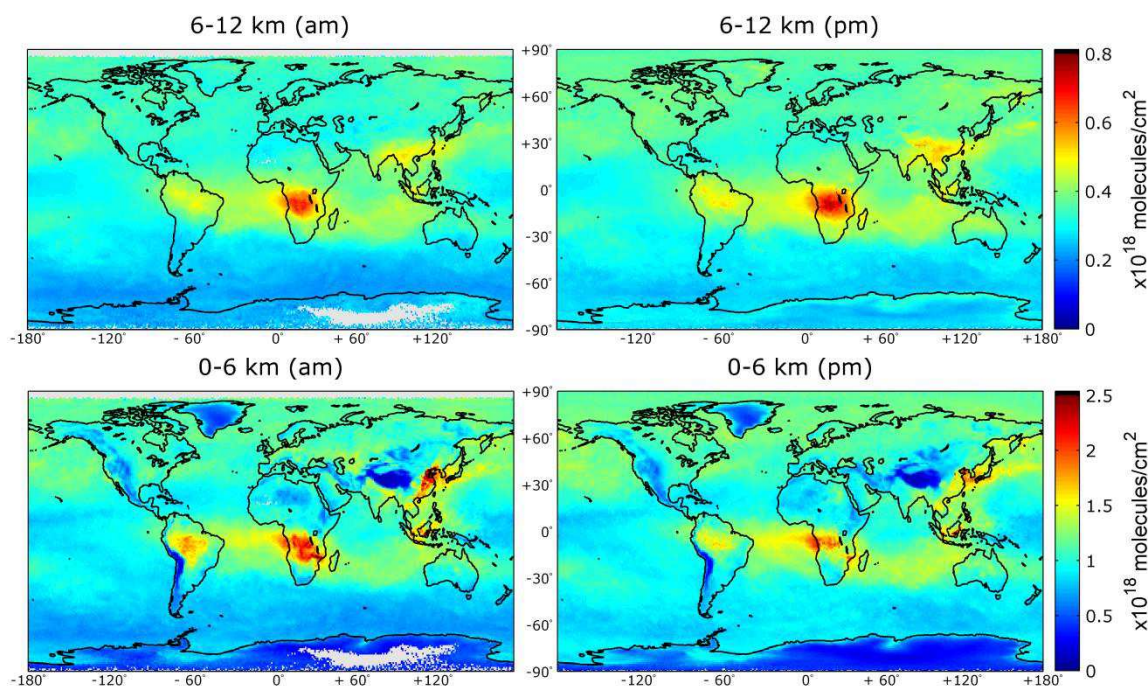


Fig. 4.5 - Colonnes partielles 0-6 km et 6-12 km de FORLI-CO, moyennées pour la période du 15 septembre au 15 octobre 2009. D'après Hurtmans et al. (2012).

En moyenne, la colonne partielle 0-6 km représente 62% de la colonne totale. (cf. Annexe H et la Table 4.1 pour les pourcentages des autres colonnes partielles par rapport à la colonne totale).

Table 4.1 - Pourcentage de différentes colonnes partielles par rapport à la colonne totale. Ces chiffres sont déduits des moyennes mensuelles des mois d'avril et septembre 2010 (cf. Annexe H pour les cartes représentant ces pourcentages à l'échelle du globe)

Colonne partielle	0-2 km	0-4 km	0-6 km	0-8 km	0-10 km	0-12 km	0-14 km	0-16 km	0-18 km
100*(colonne partielle/colonne totale)	26	45	62	75	84	90	93	95	97

4.1.3 Distributions mensuelles (6 ans)

Toutes les cartes représentant les distributions mensuelles (jour) de 2008 à 2013 sont présentées sur la Fig. 4.6. Ces cartes font apparaître les zones source. On distingue les deux principales sources : les émissions anthropiques au-dessus des régions industrialisées (dans l'hémisphère nord) et les émissions liées aux feux de biomasse, en Afrique, en Amérique du sud et dans les régions boréales en été.

Le CO émis au-dessus des villes et des régions polluées de l'hémisphère nord s'accumule tout au long de l'hiver boréal (à partir de novembre). A partir de janvier/février, les moyennes de la colonne totale de CO dans l'hémisphère nord sont généralement de l'ordre de 2×10^{18} molécules/cm² et augmentent jusqu'en avril où elles peuvent atteindre 2.6×10^{18} molécules/cm². Avril est le mois de l'année où les valeurs de CO dans l'hémisphère nord sont les plus élevées, en particulier au-dessus de la Chine. Les panaches de pollution, représentés par les fortes valeurs de CO, se déplacent vers l'est, au-dessus du Pacifique vers les Etats-Unis. Sur les différentes cartes d'avril (Fig. 4.6), on distingue les fortes valeurs représentées en jaune/orange/rouge au-dessus de l'Equateur et les faibles valeurs (en bleu) dans l'hémisphère sud. A partir du mois de mai, quand l'ensoleillement devient plus intense dans l'hémisphère nord, les concentrations de CO commencent à diminuer car le CO est détruit par le radical OH en présence de lumière. Ainsi les valeurs diminuent au fur et à mesure des mois

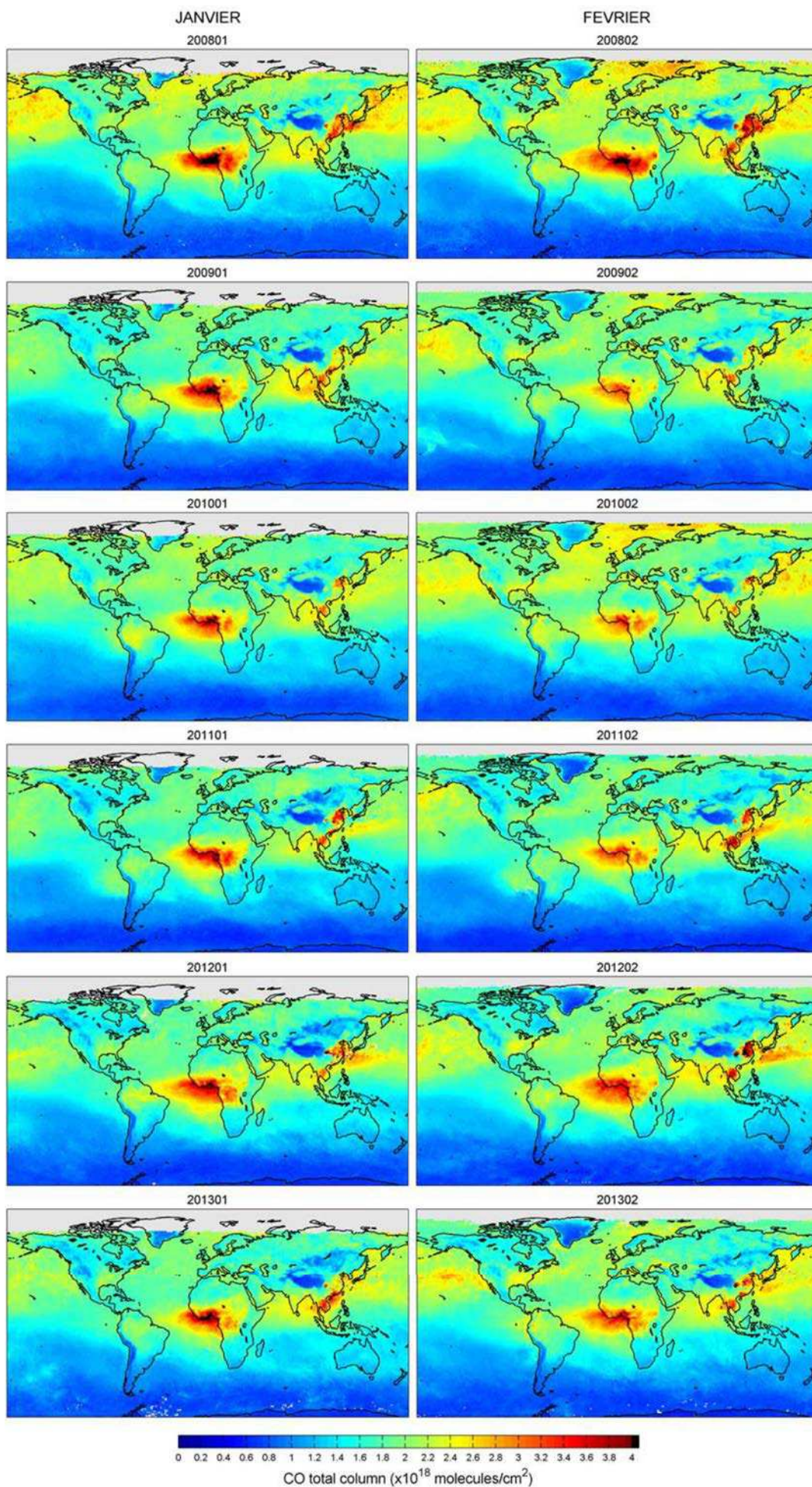
(à partir de mai), jusqu'à atteindre les valeurs de fond en octobre, où la moyenne de la colonne totale est égale à 1.6×10^{18} molécules/cm². Globalement, 2011 est l'année où les concentrations sur l'hémisphère nord sont les moins élevées.

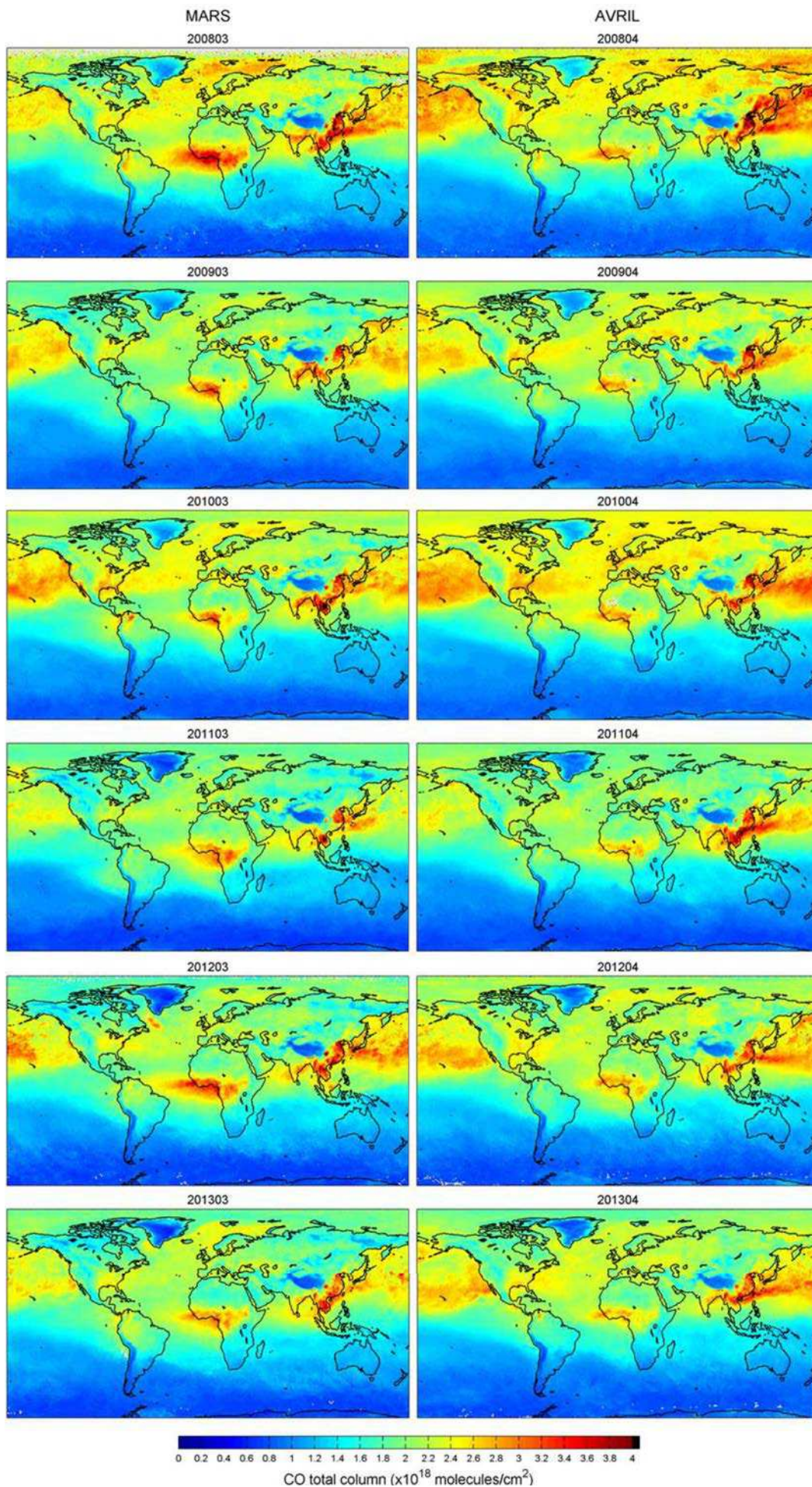
Le CO émis lors de feux de biomasse est visible en Afrique et en Amérique du sud durant certains mois de l'année. Ces feux sont soit déclenchés par les agriculteurs pour le défrichage, soit provoqués par la foudre à la fin de la saison sèche. Les feux de savane dans les pays du Golfe de Guinée en Afrique ont lieu entre novembre et avril. Les fortes concentrations sont transportées au-dessus de l'Atlantique, jusqu'aux côtes d'Amérique du Sud. La saison des feux en Afrique centrale commence dès le mois de juin, pour atteindre sa période la plus intense en août (Fig. 4.6), et dure jusqu'en octobre. En Amérique du sud, la saison commence en août, l'intensité des feux est maximale en septembre/octobre, et peut durer jusqu'en décembre.

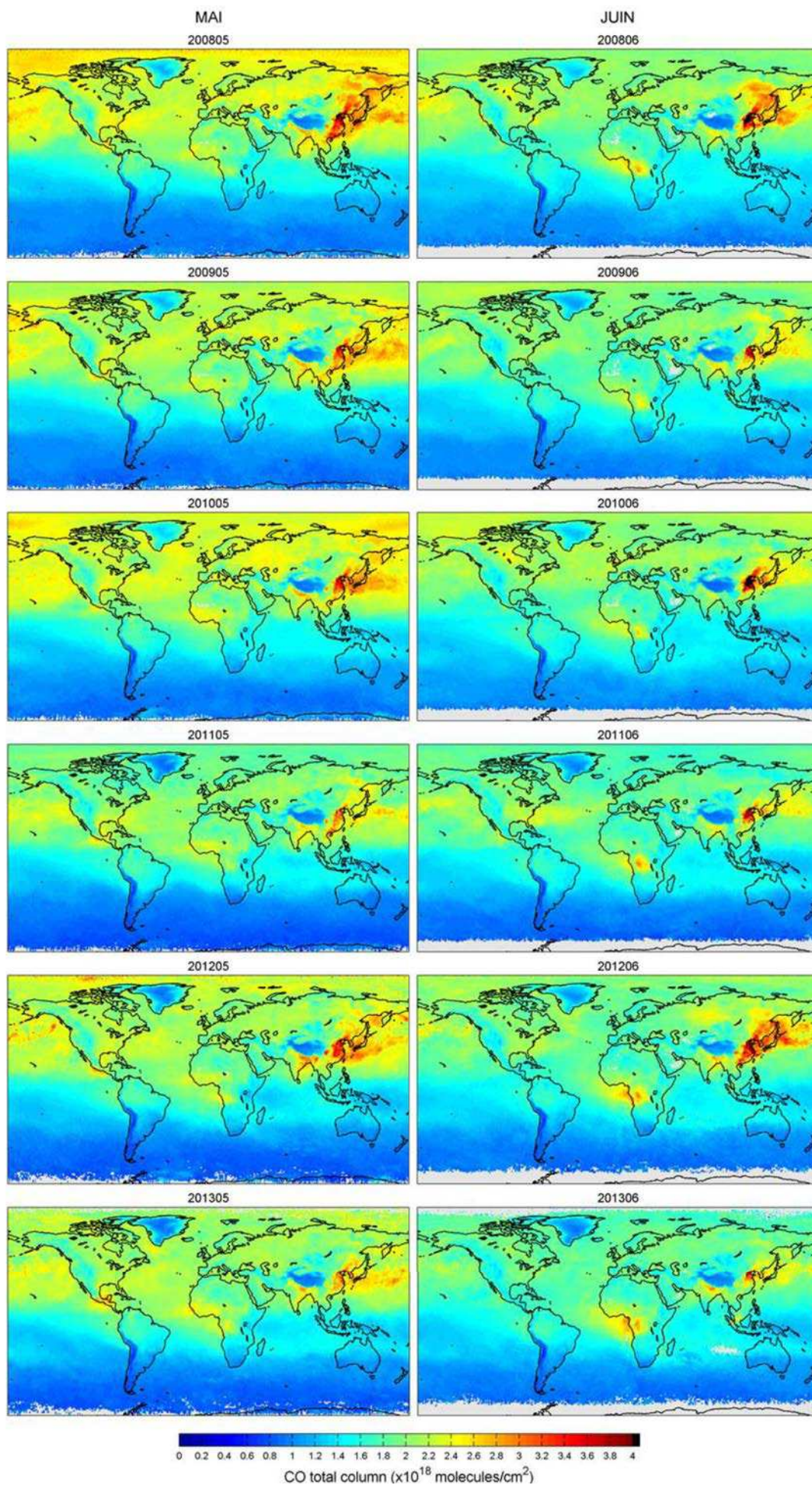
Les épisodes exceptionnels de feux qui ont sévi en Russie et en Sibérie sont aussi visibles sur les cartes d'août 2010 et 2012, respectivement (cf. sections 4.3.3 et 4.3.6).

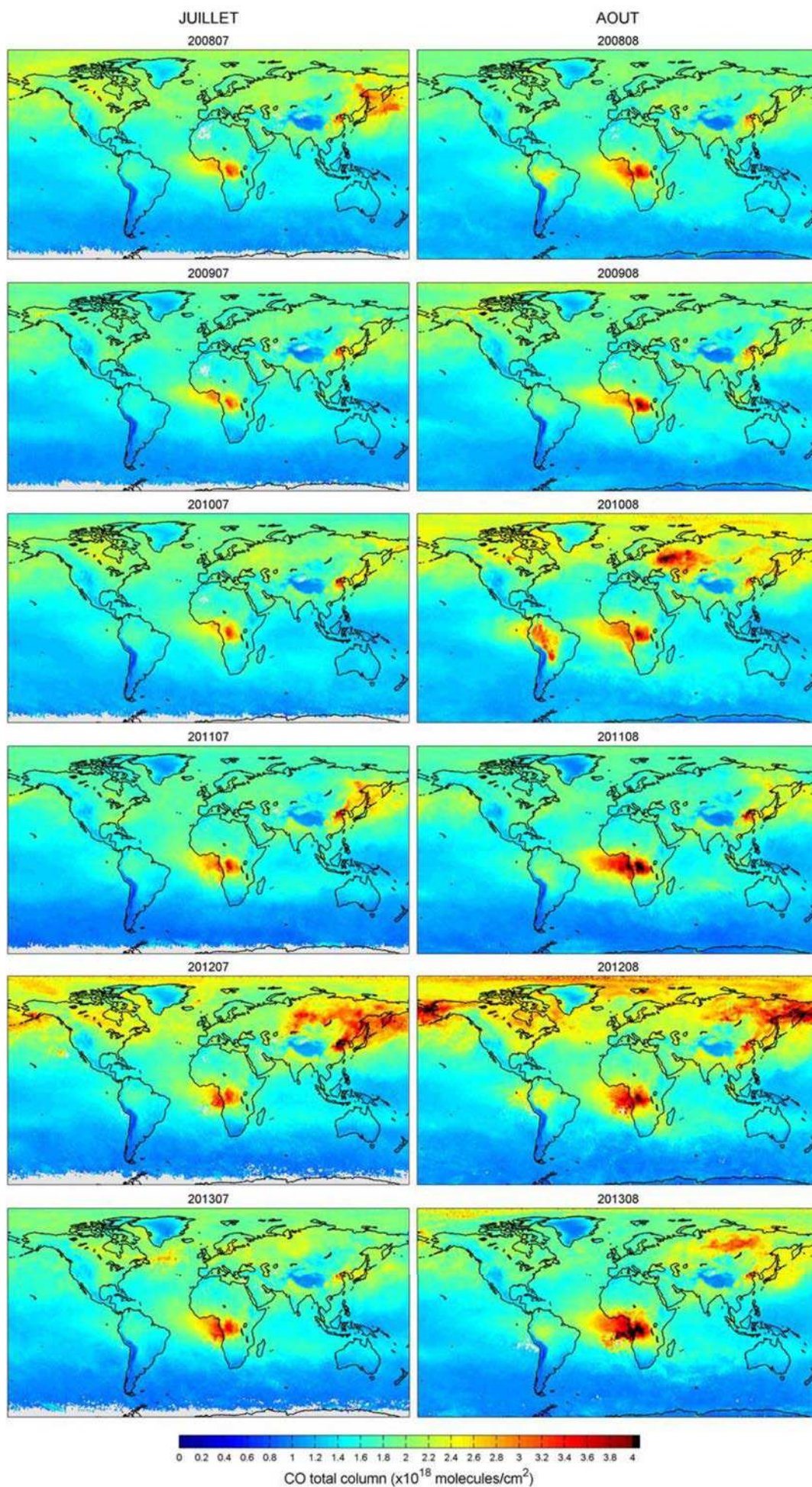
Tout au long de l'année, on remarque de fortes valeurs au-dessus de la Chine, où le CO est émis au-dessus des villes et des régions industrielles. Le CO émis vient de la combustion incomplète des énergies fossiles, comme le charbon.

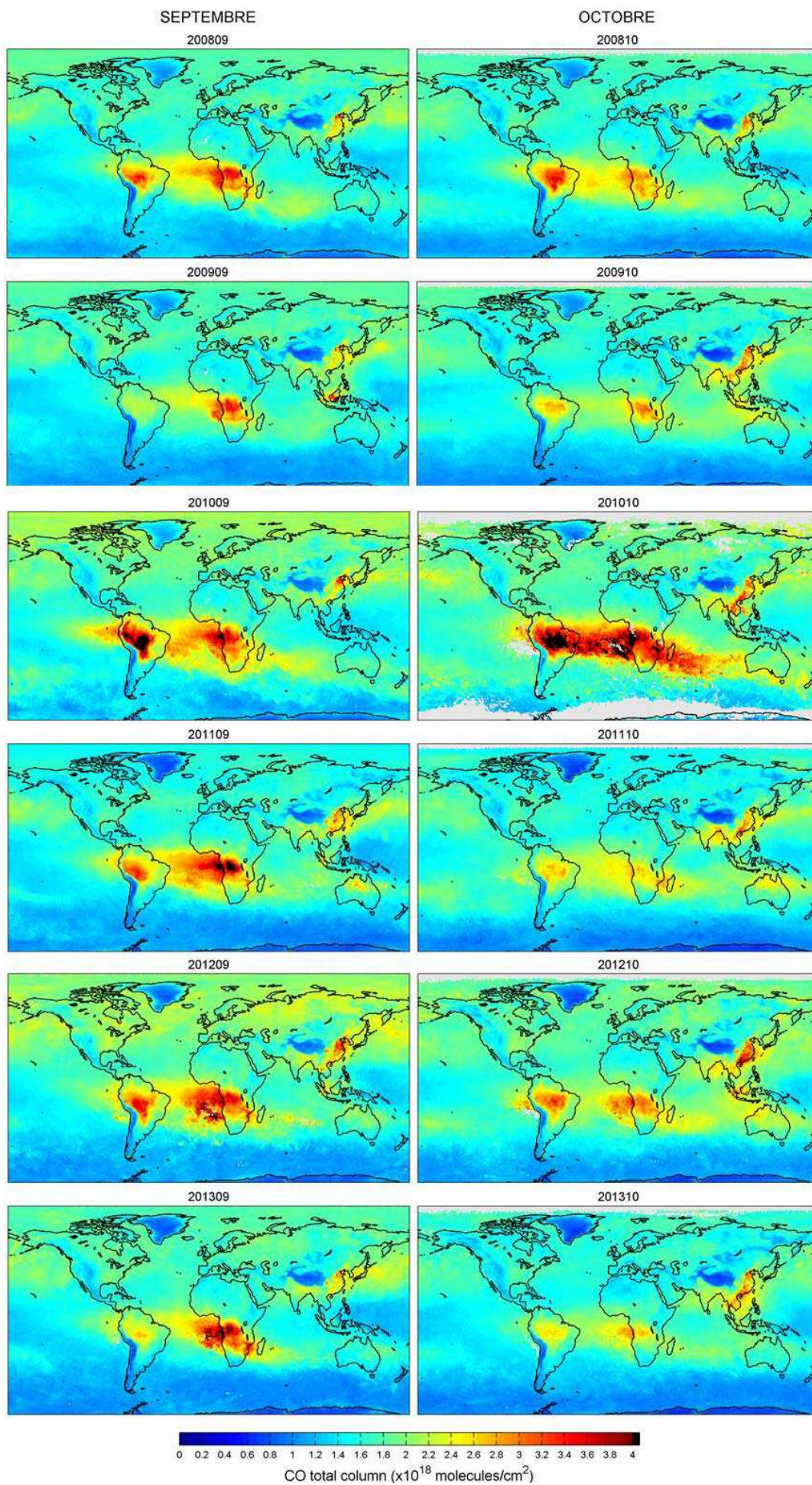
Il est intéressant de constater la différence entre les colonnes totales sur la côte ouest des Etats-Unis et les colonnes totales au large de ces côtes, dans l'océan Pacifique, en février par exemple. Cette différence est due au relief du continent. En effet, l'élévation des terres près de cette côte fait que la hauteur de la colonne au-dessus des terres est moins importante que la hauteur de la colonne au-dessus de la mer. D'où des colonnes totales de CO moins élevées sur les terres.











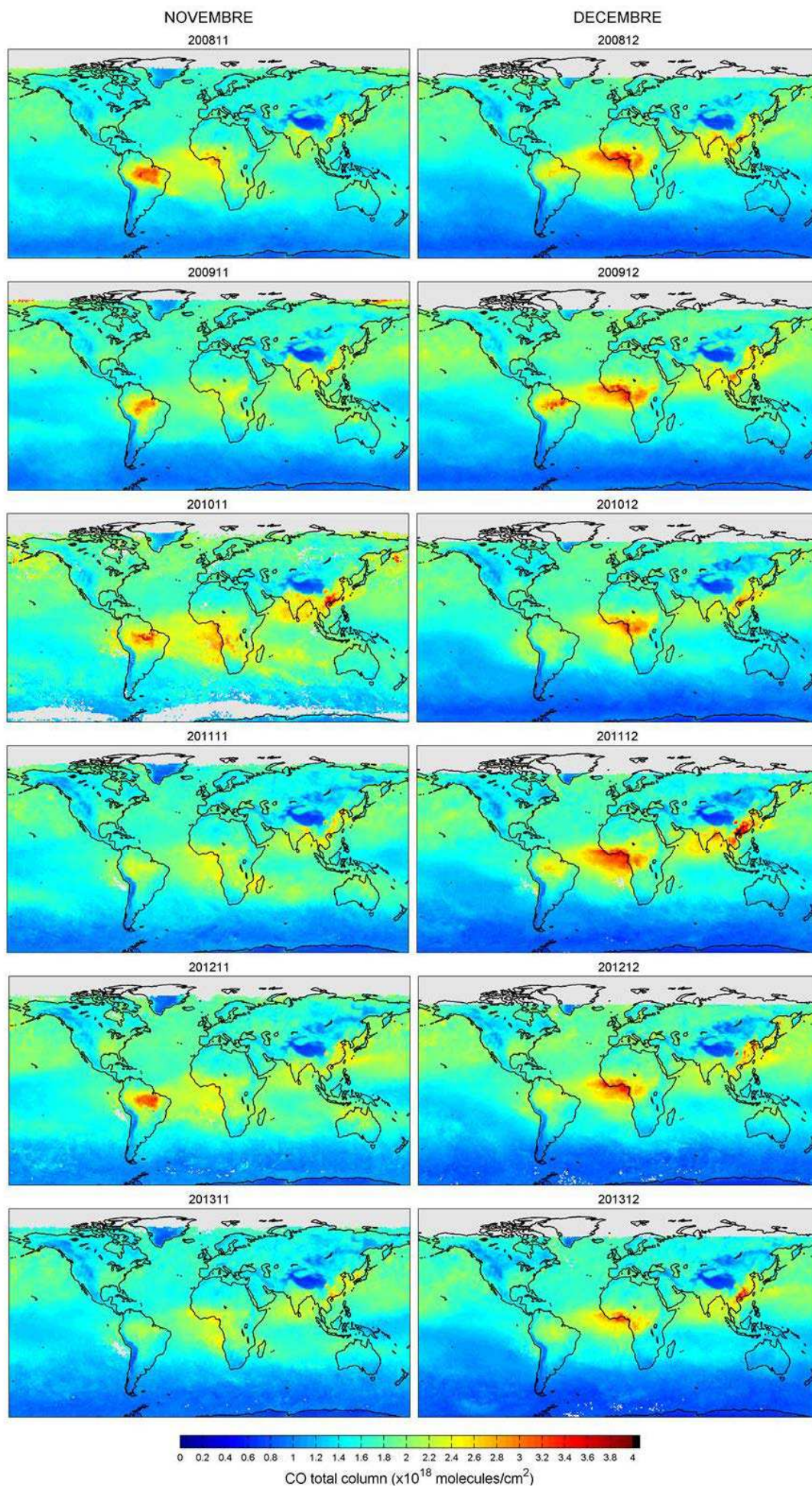


Fig. 4.6 - Distributions de colonnes totales de CO restituées par FORLI pour tous les mois de 2008 à 2013. Seules les données de jour sont présentées. Elles sont moyennées sur une grille de $1^\circ \times 1^\circ$.

4.1.4 Coupe latitudinale

La Fig. 4.7 montre les colonnes totales de CO IASI en coupe latitudinale, c'est-à-dire moyennées sur les longitudes, pour la période du 1^{er} janvier 2008 au 31 décembre 2013. Chaque trait vertical représente une journée. On peut ainsi observer la variabilité saisonnière du CO.

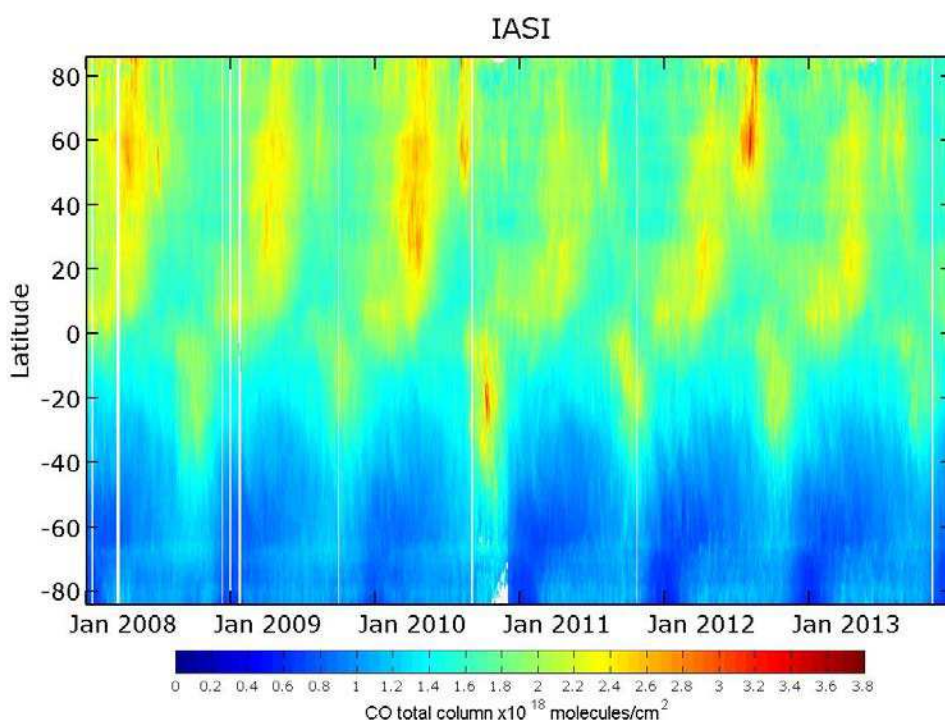


Fig. 4.7 - Coupe latitudinale des colonnes totales de CO de 2008 à 2013. Les traits blancs correspondent aux journées sans données. Entre le 14 septembre et le 1 décembre 2010, Eumetsat n'a fourni que les données de température et d'humidité correspondant aux pixels clairs (couverture nuageuse égale à 0%), réduisant ainsi le nombre de pixels traités par FORLI (d'où une zone sans données vers 80°S et au-delà de 80°N à cette période).

Dans l'hémisphère nord, où est située la majorité des sources, les valeurs maximales de CO sont relevées entre janvier et avril, quand la luminosité est faible. Le CO s'accumule au fur et à mesure des mois. De mai à juillet, les valeurs diminuent rapidement à cause de la destruction photochimique. L'année 2011 montre des valeurs généralement moins élevées que

les cinq autres années. En 2010 et 2012, on peut voir les fortes valeurs associées aux feux qui ont eu lieu en Russie ces deux étés (cf. sections 4.3.3 et 4.3.6). Les feux de 2012 ont touché une grande partie de la Sibérie et des émissions record ont été observées.

Dans l'hémisphère sud, les fortes concentrations sont dues d'une part aux feux de défrichements pour l'agriculture qui ont lieu en Afrique centrale (entre l'équateur et 30°S) entre août et septembre et, d'autre part, aux feux en Amérique du sud qui sévissent chaque année à partir de septembre. Ces feux sont plus marqués en 2010.

4.1.5 Variabilité sur 6 ans

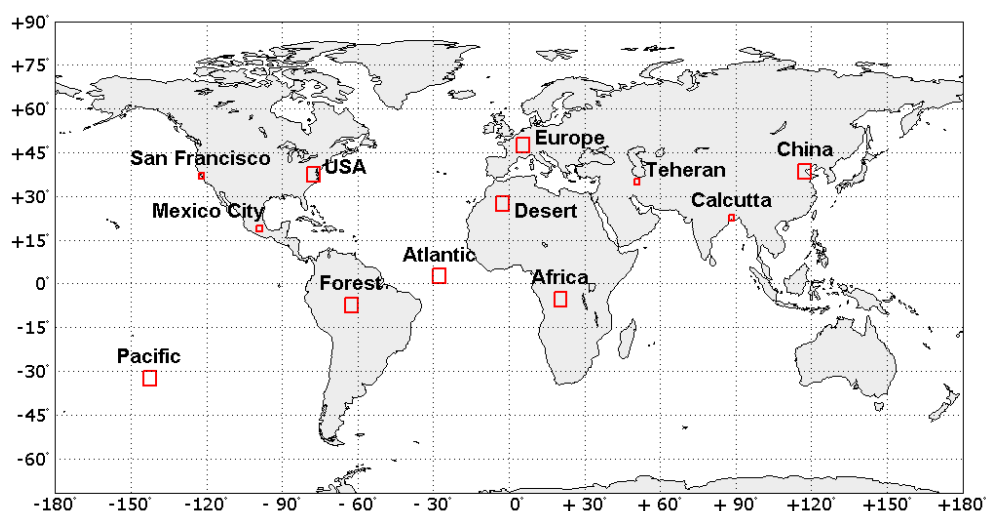


Fig. 4.8 - Régions où sont moyennées les colonnes totales dont la variabilité est présentée sur la Fig. 4.9. La taille des boîtes est de 5° x 5°, sauf pour les villes (San Francisco, Mexico city, Teheran et Calcutta) où la taille est de 2° x 2°.

Les Fig. 4.9 et Fig. 4.10 présentent la variabilité des colonnes totales de CO sur 6 ans, de 2008 à 2013, pour différentes régions représentant différentes situations géophysiques : mer loin de toute source de pollution, mer dans une région où le CO peut être transporté, villes polluées, forêt, région désertique, région affectée par les feux ou par de la pollution (Fig. 4.8). Les coordonnées géographiques des différentes régions sont indiquées dans la Table 4.2.

Table 4.2 - Moyennes et écarts types des colonnes totales de CO, entre 2008 et 2013, pour les régions présentées sur la Fig. 4.8. Les régions sont rangées par ordre croissant de CO moyen. Les coordonnées géographiques des différentes boîtes sont indiquées.

Régions	CO total moyen (x 10 ¹⁸ molec./cm ²)	Ecart type moyen associé
Pacific [(-35°, -30°N); (-145°, -140°E)]	1.2	0.1
Mexico City [(18°, 20°N); (-100°, -98°E)]	1.5	0.2
Teheran [(34°, 36°N); (50°, 52°E)]	1.7	0.2
Desert [(25°, 30°N); (-5°E, 0)]	1.8	0.1
Europe [(45°, 50°N); (3°, 8°E)]	1.8	0.3
USA [(35°, 40°N); (-80°, -75°E)]	2.1	0.3
San Francisco [(36°, 38°N); (-123°, -121°E)]	2.1	0.3
Forest [(-10°, -5°N); (-65°, -60°E)]	2.2	0.3
Atlantic [(0, 5°N); (-30°, -25°E)]	2.3	0.2
Calcutta [(21.5°, 23.5°N); (87.5°, 89.5°E)]	2.4	0.3
Africa [(-8°, -3°N); (18°, 23°E)]	2.6	0.4
China [(36°, 41°N); (115°, 120°E)]	2.9	1.1

Les valeurs les plus faibles sont observées au-dessus du Pacifique (1.2×10^{18} molécules/cm² en moyenne pour les 6 ans de l'étude de 2008 à 2013, cf. Table 4.2), loin des continents et des activités humaines. Les plus fortes valeurs sont relevées en Chine (2.9×10^{18} molécules/cm² en moyenne) et lors des périodes de feux, en Afrique ou en Amazonie (boîte « Forest » Fig. 4.8). La Chine est la région pour laquelle on observe le plus de variabilité au sein de la boîte de 5° x 5° (Fig. 4.9).

Les boîtes contenant les villes présentent des valeurs moyennes élevées. Pour les villes de Mexico city et Téhéran qui sont en altitude (2421 m et 1189 m respectivement), la colonne totale moyenne de CO est de 1.5×10^{18} et 1.7×10^{18} molécules/cm², et l'écart type est plutôt faible (0.2). Les villes de San Francisco et de Calcutta ont des valeurs moyennes plus élevées (2.1×10^{18} et 2.4×10^{18} molécules/cm²) et des écarts types de 0.3. Ces valeurs plus élevées s'expliquent notamment car San Francisco et Calcutta sont plus proches du niveau de la mer que les villes Mexico city et Téhéran qui sont en altitude, la colonne totale est donc calculée sur une hauteur moins importante. De plus, le transport longue distance de panaches de CO depuis l'Asie peut affecter San Francisco.

Au-dessus de l'océan, on remarque que les valeurs moyennes dans la boîte Atlantique sont pratiquement le double des valeurs de la boîte Pacifique (2.3×10^{18} et 1.2×10^{18} molécules/cm², respectivement). En effet, le CO au-dessus de l'Atlantique vient de l'Afrique, d'où le CO émis lors de feux (d'origine naturelle ou anthropique) est transporté. La boîte au-dessus du Pacifique est en revanche loin des sources de pollution.

Pour de nombreuses régions, on peut observer un cycle saisonnier. Sur la Fig. 4.10, nous présentons les mêmes valeurs moyennes que sur la Fig. 4.9 mais sans les écarts types pour faire ressortir les variations saisonnières. De plus, nous avons réuni les courbes des villes d'une part, des régions de l'hémisphère nord d'autre part et enfin les courbes de régions de feux et de transport depuis ces feux. Nous avons choisi de mettre la courbe associée à la région Pacifique avec ces dernières courbes car les régions de feux étudiées sont majoritairement dans l'hémisphère sud.

Pour les villes, c'est entre janvier et juin que les plus fortes concentrations sont mesurées au-dessus de Mexico city et de San Francisco. Même chose dans l'hémisphère nord pour les régions Europe, USA et Désert, avec un pic au mois de mars. Il est difficile d'observer un cycle saisonnier au-dessus de la Chine, cependant les plus faibles valeurs de l'année sont systématiquement mesurées en novembre et décembre, pour les 6 années de l'étude.

Malgré les faibles concentrations au-dessus du Pacifique, un cycle saisonnier est également observé avec un pic en octobre. Lors des feux liés à l'agriculture en Afrique centrale qui ont lieu chaque année autour du mois d'août, les colonnes totales de CO atteignent des valeurs supérieures à 3.5×10^{18} molécules/cm². La saison des feux en Amazonie démarre un peu plus tard dans l'année, vers le mois de septembre, et est d'une intensité moindre, même si elle reste élevée. C'est en 2011 et 2013 que les feux en Afrique ont émis les plus grandes quantités de CO par rapport aux autres années (Fig. 4.10). Même chose pour 2010 pour les feux en Amazonie.

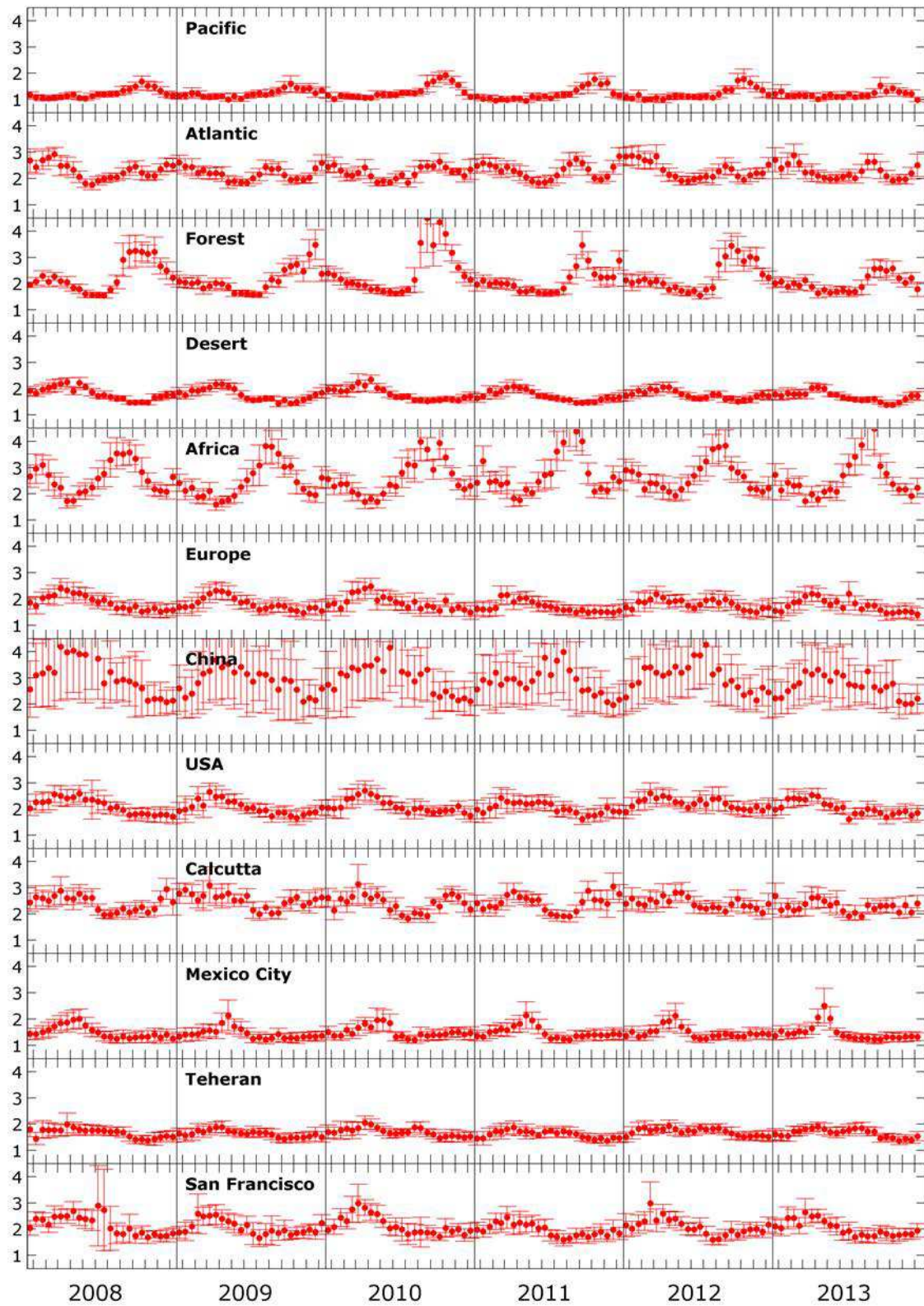


Fig. 4.9 - Variabilité des colonnes totales de CO ($\times 10^{18}$ molécules/cm²) pour les régions présentées sur la Fig. 4.8. Chaque point représente une moyenne sur 15 jours. Les barres verticales représentent l'écart type associé.

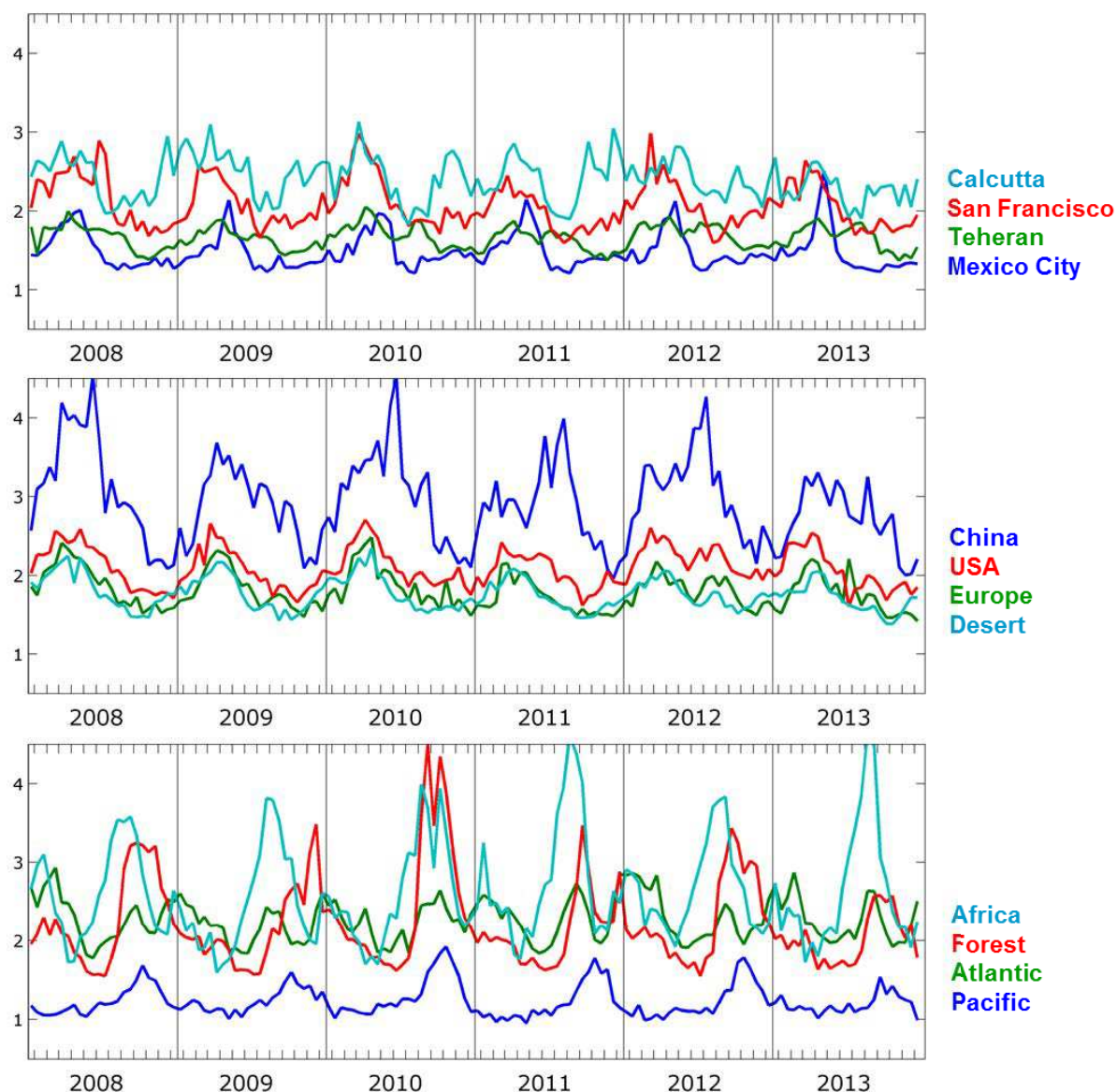


Fig. 4.10 - Mêmes données que la Fig. 4.9 mais sans l'écart type. Courbes des villes (en haut), des régions de l'hémisphère nord (au milieu) et des régions de feux et de transport depuis ces feux (en bas). La courbe associée à la région Pacifique est avec ces dernières courbes car les régions de feux étudiées sont majoritairement dans l'hémisphère sud.

4.1.6 Profils moyens

Les profils de CO moyennés sur certaines des régions étudiées précédemment sont présentés sur la Fig. 4.11. Le profil *a priori* utilisé dans FORLI est représenté en trait pointillé noir. Le profil bleu de la boîte « Pacific », loin des sources d'émission, montre de très faibles concentrations de CO pour toutes les couches de l'atmosphère. Au-dessus des feux en Afrique, ou au-dessus de l'Europe et de Téhéran, les rapports de mélange des premières

couches atteignent 150-200 ppbv. Quant aux rapports de mélange au-dessus des zones industrialisées de la boîte « China », les valeurs près de la surface atteignent plus de 500 ppbv (profil rouge).

La fonction de lissage (ou averaging kernel) correspondant à la colonne totale (somme des lignes de la matrice des fonctions de lissage, cf. section 2.2.4) montre à quels niveaux est sensible la mesure. Ainsi, on peut voir sur la partie droite de la Fig. 4.11 que la sensibilité de IASI est maximale vers 6-7 km. Les fonctions de lissage pour les régions « China », « Europe » et « Teheran » pointent légèrement plus bas que les fonctions de lissage « Pacific » ou « Africa ». D'autres exemples de profils et de fonctions de lissage sont présentés dans le chapitre 5.

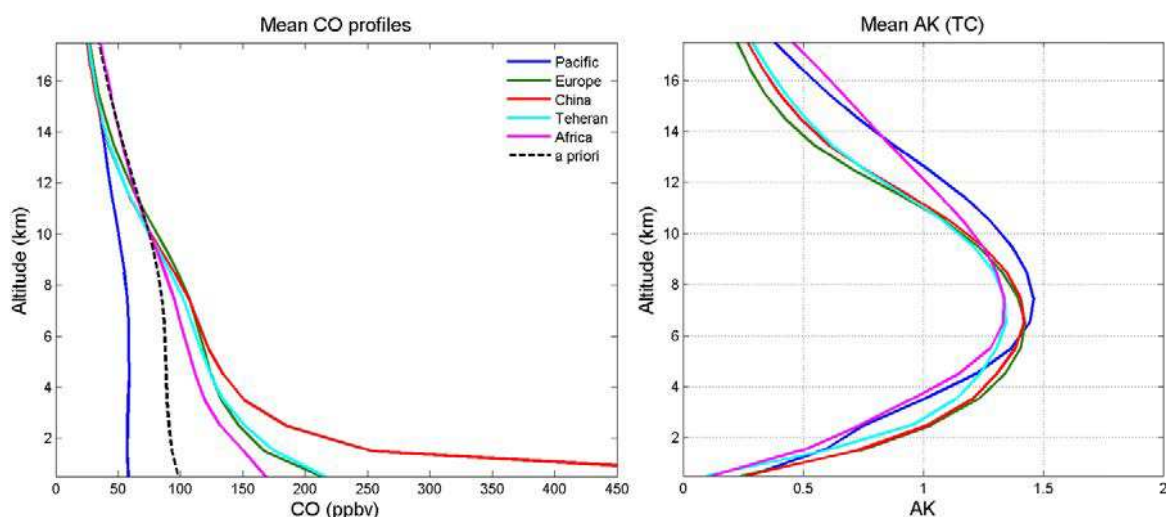


Fig. 4.11 - Profils moyens de CO (à gauche) et fonctions de lissage correspondant à la colonne totale (à droite) pour différentes régions (dont les coordonnées géographiques sont données dans la Table 4.2). La moyenne est effectuée sur les données de jour d'avril 2009 (août 2011 pour la région au-dessus de l'Afrique).

4.2 Validation

Après avoir présenté en détail les six ans de données de CO issues des mesures IASI, nous allons présenter les résultats de l'exercice de validation des résultats de FORLI-CO qui a eu lieu en 2009 et dont j'ai été responsable. Il s'agit de la première publication relative aux données FORLI-CO. Elles ont été comparées à d'autres mesures satellite. L'article a été publié en 2009 dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics (ACP)* dans une édition spéciale consacrée à l'instrument IASI. Dans un second temps, nous présenterons les résultats d'autres exercices de validation qui font suite à cet article.

4.2.1 Résumé long de l'article de validation des données CO de IASI

Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission: evaluation with other space-borne remote sensors

George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Turquety, S., Coheur, P.-F., Pommier, M., Hadji-Lazaro, J., Edwards, D. P., Worden, H., Luo, M., Rinsland, C., and McMillan, W.

Atmos. Chem. Phys., 9, 8317-8330, doi:10.5194/acp-9-8317-2009, 2009.

Dans cet article, nous comparons les distributions globales de CO mesurées par l'instrument IASI à bord de MetOp-A avec les distributions des instruments MOPITT/TERRA, AIRS/AQUA et TES/AURA qui, comme IASI, sondent l'atmosphère dans l'infrarouge thermique.

Pour chacun des trois mois suivants, août 2008, novembre 2008 et février 2009, les mesures de la colonne totale de CO de chacun des instruments ont été moyennées puis comparées. Les différents produits ont été « ajustés » afin de prendre en compte l'utilisation de différents *a priori* dans les méthodes d'inversion. Cet ajustement suit les méthodes présentées dans Rodgers and Connor (2003) et Luo et al. (2007). Pour les mesures de IASI et TES qui ont des résolutions verticales très éloignées, les fonctions de lissage de IASI ont été appliqués aux mesures TES.

Les mesures de CO IASI sont inversées par l'algorithme FORLI-CO (cf. section 2.3) qui restitue les concentrations à partir des spectres en luminance. Les instruments MOPITT, AIRS

et TES, ainsi que leurs missions et méthodes d'inversions sont également décrits. A la différence des méthodes d'inversion de IASI, MOPITT (v3) et AIRS qui utilisent des profils *a priori* de CO fixes, ceux de TES varient suivant la localisation sur le globe ainsi que la période de l'année. Les données de CO de MOPITT, AIRS et TES ont été utilisées suivant les recommandations de leur équipe, notamment pour filtrer les données nuageuses.

Les comparaisons directes des distributions de la colonne totale de CO pour le mois d'août 2008 (données de jour uniquement, moyennées sur une grille de $1^\circ \times 1^\circ$) montrent globalement un bon accord entre les quatre instruments. Les concentrations de CO varient entre 4×10^{17} et 4×10^{18} molécules/cm² suivant qu'il s'agisse de valeurs de fond ou de valeurs observées lors de feux. Les valeurs de fond de IASI sont cependant plus basses que celles des autres instruments. IASI et AIRS offrent une meilleure couverture géographique. Le mois d'août est marqué par des épisodes de feux de défrichement en Afrique, ainsi qu'en Amérique du Sud. Les émissions de CO dues à ces feux sont clairement observées par les quatre instruments, même si les concentrations diffèrent. Il en va de même pour les émissions de CO dues à la pollution en Chine. Les colonnes totales de CO restituées à partir des observations IASI présentent quelques valeurs aberrantes au-dessus des régions désertiques d'Afrique du Nord et de la péninsule arabique, FORLI rencontrant des difficultés de transfert radiatif quand les émissivités sont mal estimées. AIRS, qui rencontre des difficultés du même type, préfère filtrer ces points qui apparaissent en gris (Figure 6 de George et al. (2009)) (Ces problèmes d'émissivité ont depuis été réglés pour FORLI, cf. section 4.1.1).

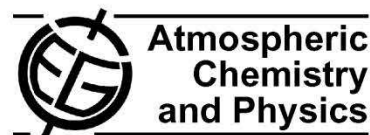
Si on s'intéresse aux statistiques faites sur les trois mois de l'étude, les coefficients de corrélation sont de 0.87 pour IASI/MOPITT, 0.92 pour IASI/AIRS et 0.84 pour IASI/TES et montrent un bon accord entre IASI et les trois autres instruments, sur le globe en général. Les meilleurs coefficients de corrélation sont calculés pour la région équatoriale (latitudes entre -15° et $+15^\circ$) : 0.90, 0.95 et 0.84 entre IASI et MOPITT, AIRS et TES, respectivement. Le biais entre les colonnes totales de CO IASI et des trois autres instruments est inférieur à 7%, dans l'hémisphère nord et les régions équatoriales. Dans l'hémisphère sud, aux latitudes inférieures à -15° , les concentrations de CO IASI sont en moyenne plus basses de 11% par rapport à celles de MOPITT et AIRS. Si de fortes concentrations sont mesurées, comme en cas de feux en Afrique en août 2008, IASI et MOPITT montrent un bon accord mais en revanche AIRS est systématiquement plus bas que IASI (de 17% environ). TES montre des

distributions similaires à IASI, même si les concentrations sont légèrement plus basses, et ce pour toutes les latitudes. Les concentrations de MOPITT v3 sont généralement plus élevées que celles de IASI avec un biais moyen global de 9.6% (11.4% pour les latitudes comprises entre 45° et 90° et 1.1% pour les latitudes comprises entre -15° et 15°). Les concentrations de AIRS sont elles aussi plus élevées que celles de IASI pour les latitudes sud (entre -15° et -45°), avec un biais de 13.5%. Les résultats des autres études de validation publiés par la suite sont présentés dans la section 4.2.3.

4.2.2 Article 2

En février 2014, le « ISI citation index » de cet article est de 56.

Atmos. Chem. Phys., 9, 8317–8330, 2009
 www.atmos-chem-phys.net/9/8317/2009/
 © Author(s) 2009. This work is distributed under
 the Creative Commons Attribution 3.0 License.



Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission: evaluation with other space-borne remote sensors

M. George¹, C. Clerbaux¹, D. Hurtmans², S. Turquety^{1,*}, P.-F. Coheur², M. Pommier¹, J. Hadji-Lazaro¹, D. P. Edwards³, H. Worden³, M. Luo⁴, C. Rinsland⁵, and W. McMillan⁶

¹UPMC Univ. Paris 06; Université Versailles St-Quentin; CNRS/INSU, LATMOS-IPSL, Paris, France

²Spectroscopie de l'Atmosphère, Service de Chimie Quantique et Photophysique, Université Libre de Bruxelles (ULB), Brussels, Belgium

³Atmospheric Chemistry Division, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, USA

⁴Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California, USA

⁵NASA Langley Research Center, Hampton, Virginia, USA

⁶Center for Satellite Applications and Research, National Environmental Satellite, Data and Information Service, NOAA, Camp Springs, Maryland, USA

*now at: UPMC Univ. Paris 06; LMD/IPSL, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France

Received: 24 February 2009 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 17 April 2009

Revised: 20 October 2009 – Accepted: 20 October 2009 – Published: 3 November 2009

Abstract. The Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) onboard the MetOp satellite measures carbon monoxide (CO) on a global scale, twice a day. CO total columns and vertical profiles are retrieved in near real time from the nadir radiance spectra measured by the instrument in the thermal infrared (TIR) spectral range. This paper describes the measurement vertical sensitivity and provides a first assessment of the capabilities of IASI to measure CO distributions. On the global scale, 0.8 to 2.4 independent pieces of information are available for the retrieval. At mid latitudes, the information ranges between 1.5 and 2, which enables the lower and upper troposphere to be distinguished, especially when thermal contrast is significant. Global distributions of column CO are evaluated with correlative observations available from other nadir looking TIR missions currently in operation: the Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) onboard TERRA, the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS) onboard AQUA and the Tropospheric Emission Spectrometer (TES) onboard AURA. The IASI CO columns are compared with MOPITT, AIRS and TES CO columns, adjusted with the a priori, for three different months: August 2008, November 2008 and February 2009. On average, total column discrepancies of about 7% are found between IASI and the three other sounders in the

Northern Hemisphere and in the equatorial region. However when strong CO concentrations are present, such as during fire events, these discrepancies can climb as high as 17%. Instrument specifications of IASI versus other missions are also discussed.

1 Introduction

As one of the most important precursors of ozone (O₃), carbon monoxide (CO) is an important trace gas for the understanding of both air quality and climate forcing. Formed by the incomplete combustion of fossil and bio-fuels, and by vegetation burning, CO is also produced in the atmosphere via the oxidation of methane and non-methane hydrocarbons by the hydroxyl radical (OH) (Duncan et al., 2008). It is the largest global sink of the OH radical and thus plays an important role in the oxidizing power of the atmosphere and in the concentrations of greenhouse gases such as methane and O₃. Because of its relatively long lifetime (a few weeks to a few months depending on latitude and time of year), CO has been extensively used as an atmospheric tracer of transport (Logan et al., 1981).

CO is routinely measured by ground-station networks (Kurylo, 1991; Pougachev and Rinsland, 1995; Novelli et al., 1998; Yurganov et al., 2004, 2005; Velazco et al., 2007; Zander et al., 2008), airborne measurement campaigns, airborne



Correspondence to: M. George
 (maya.george@latmos.ipsl.fr)

networks (Nedelec et al., 2005) and by instruments onboard satellites. In recent years, extensive CO observations from space, from a number of satellite platforms, have yielded a global view of the CO distribution, from the troposphere to the mesosphere. Limb-sounders (in absorption or emission) can derive vertically resolved profiles for the mid/high-troposphere and higher, with a limited spatial coverage, e.g. SMR/ODIN (Barret et al., 2006), MIPAS/ENVISAT (Funke et al., 2007), MLS/AURA (Pumphrey et al., 2007; Livesey et al., 2008) and ACE-FTS/SCISAT-1 (Clerbaux et al., 2008a). Nadir viewing remote sensors offer the advantage of sounding into the lower atmosphere, although with a limited vertical resolution, as was demonstrated from MOPITT/TERRA (Deeter et al., 2003; Edwards et al., 2004), SCIAMACHY (Buchwitz et al., 2004, 2007; de Laat et al., 2006, 2007; Frankenberg et al., 2005), TES/AURA (Rinsland et al., 2006; Luo et al., 2007a and b), AIRS/AQUA (McMillan et al., 2005), and IASI/MetOp (Turquety et al., 2004; Clerbaux et al., 2009). Both nadir viewing and limb viewing instruments are often impacted by the presence of clouds. Time series of CO measurements show the impact of inter-annual variations, for example a moderate El Niño event in 2006 (Rinsland et al., 2008).

Validation of satellite CO retrievals with space-borne, air-borne or ground-based measurements has already been performed in the frame of different exercises or campaigns (Clerbaux et al., 2002, 2008a; Emmons et al., 2004, 2007, 2009; Warner et al., 2007; Luo et al., 2007a and b; Yurganov et al., 2008). In this paper, we focus on the analysis of global CO distributions recently calculated from the radiance spectra recorded by the IASI instrument. A case study of the Mediterranean fires during the summer of 2007, which illustrates the capability of IASI to measure extreme CO concentrations and to track the plume from wildfires, is presented in a companion paper (Turquety et al., 2009). Here we compare the IASI global distributions with CO observations available from other nadir looking instruments which also record surface and atmospheric signals in the thermal infrared (TIR) spectral range: MOPITT, AIRS and TES. The paper presents a preliminary and non exhaustive validation exercise. It is focused on the CO total column products obtained with the FORLI-CO retrieval code in near real time. Basic theoretical elements of the software are provided but for a more in-depth description on the CO radiative transfer and retrieval algorithm we rather refer to Turquety et al. (2009) and Hurtmans et al. (2009).

The comparison is performed on monthly averaged CO data for three months, August 2008, November 2008, and February 2009. In order to take into account the different a priori used for CO retrieval by each instrument, we have followed the method suggested by Rodgers and Connor (2003) and Luo et al. (2007a). The columns have been adjusted according to the a priori used by the different teams. A full treatment that takes into account the averaging kernels (Rodgers and Connor, 2003) is presented for TES and IASI,

the two instruments with the largest differences in terms of vertical resolution.

The paper is organized as follows: First we describe the IASI-CO measurements as routinely retrieved from the operational Eumetsat radiance products. Next we compare the CO total column distributions retrieved by MOPITT, AIRS and TES data for August 2008, November 2008 and February 2009. And finally we conclude with an analysis of the observed agreement and discrepancy.

2 IASI: CO column and profile retrievals

2.1 The IASI mission

The polar-orbiting MetOp-A, launched on 19 October 2006, is the first of three successive MetOp satellites. As a component of the space segment of the Eumetsat Polar System (EPS), this operational meteorological platform carries the IASI instrument, a nadir-looking high resolution Fourier Transform Spectrometer (FTS). IASI is designed to provide atmospheric temperature and water vapour profiles for operational meteorology. Owing to its apodized spectral resolution of 0.5 cm^{-1} (with a spectral sampling of 0.25 cm^{-1}), its extended spectral range (from 645 to 2760 cm^{-1} with no gaps), and its low radiometric noise (from on-flight analysis the Noise Equivalent Delta Temperature, NEDT, is estimated to range from 0.1 to 0.4 K ; Clerbaux et al., 2009), atmospheric concentrations for several key species important to climate forcing and atmospheric chemistry monitoring can be derived from IASI radiance measurements. Such species include not only the predominant CO (Turquety et al., 2009), O_3 (Boynard et al., 2009), CH_4 (Razavi et al., 2009), HNO_3 (Wespes et al., 2009) molecules but also weakly absorbing molecules detected during extraordinary events, such as SO_2 during volcanic eruption (Clarisse et al., 2008) or reactive species in fire plumes (Coheur et al., 2009). In addition, IASI offers an excellent horizontal coverage due to its across track swath width of 2200 km , allowing global coverage twice a day, with a field of view sampled by 2×2 circular pixels each with a 12 km footprint diameter.

2.2 CO retrievals

CO distributions are retrieved from IASI radiance spectra using a dedicated software, FORLI-CO, developed at Université Libre de Bruxelles (ULB) to handle as fast as possible all the IASI spectra, i.e. 1.3 millions of observations per day, disseminated through the Eumetsat data distribution system Eumetcast about 3 h after observation. The code is based on the validated *Atmosphit* software (Barret et al., 2005; Coheur et al., 2005), but instead of using line-by-line calculations, the FORLI radiative transfer uses pre-calculated tables of absorbances at various pressure and temperature, in the spectral region of the CO 1–0 band. The code can accommodate temperature and humidity profiles coming from various

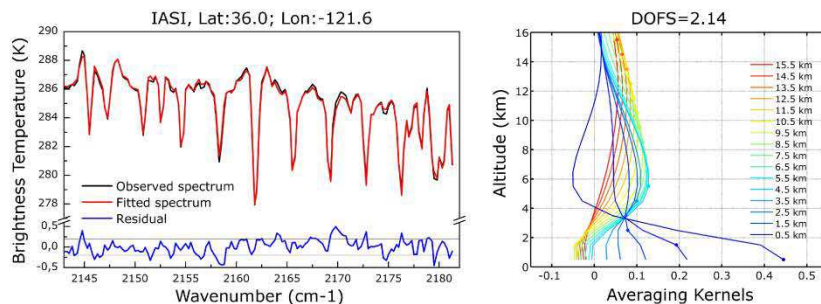


Fig. 1. Left panel: Spectral range used for the FORLI-CO retrieval. The spectrum (in brightness temperature units) was recorded around 09:30 local time, on 1 August 2008, close to Los Angeles (USA). The residual difference (blue) between the measured spectrum (black) and the calculated spectrum (red) is within the IASI radiometric noise (0.2 K). Right panel: FORLI-CO averaging kernels functions, for the same observation, for different merged vertical layers.

sources/models, including the operational MetOp Level 2 meteorological products (Schlüssel et al., 2005). These Level 2 products are validated, although some issues remain for water vapour (see Zhou et al., 2008 and Pougatchev et al., 2009).

Figure 1 illustrates, in equivalent brightness temperatures, the IASI spectral range that is used for the CO retrieval (2143–2181.25 cm⁻¹). It was chosen in order to avoid most of the other absorbing species in the CO spectral range (i.e. H₂O, O₃, CO₂ and N₂O). The plot also shows the (observed – calculated) residual after the retrieval for an observation (located over the West coast of the USA), which can be directly compared with the IASI radiometric noise level.

FORLI-CO provides CO profiles for at most 19 layers (from the surface to the top of the atmosphere). The retrieval scheme is based on the Optimal Estimation Method (OEM) described by Rodgers (2000). Given a measurement y (IASI radiance spectra), with error covariance S_e and a forward model $\hat{y} = F(x)$, the OEM then seeks the optimal solution for the state vector x (CO profile) to be retrieved. Since more than one solution could fit the observations (ill-posed problem), it is necessary to constrain the results with a priori information containing both the averaged value expected, x_a and allowed variability around this average given by a covariance matrix S_a . The solution can be found by iteratively applying:

$$\hat{x}_{i+1} = x_a + D_y[y - F(\hat{x}_i) - K_i(x_a - \hat{x}_i)] \quad (1)$$

with $D_y = \hat{S}_i K_i^T S_e^{-1}$ and $\hat{S}_{i+1} = (K_{i+1}^T S_e^{-1} K_{i+1} + S_a^{-1})^{-1}$ where $K_i = (\frac{\partial F}{\partial x})_i$ is the Jacobian at state x_i , K_i^T is its transpose, and \hat{x}_{i+1} is the updated state vector. The matrix D_y is known as the matrix of contribution functions. The error covariance of the solution is given by \hat{S}_{i+1} . The iteration starts with some initial estimate of the state, chosen to be the a priori information x_a , of covariance S_a , and terminates when convergence has been reached. An important element for the retrievals in the thermal infrared is the choice of the

prior information. Here the a priori mean profile and associated variance-covariance matrix were constructed using a database of observations that included aircraft profiles from the MOZAIC (Measurement of Ozone and water vapour by Airbus in-service air-Craft) program (Nedelec et al., 2003), and ACE-FTS satellite observations in the upper troposphere and above (Clerbaux et al., 2005). These were complemented with distributions from the LMDz-INCA global model (Turquety et al., 2008) in order to build a matrix representative of both background and polluted conditions.

The characterization of the retrieved products also uses the optimal estimation formalism; diagnostic tools therefore include retrieval errors from various sources (smoothing, measurements) and averaging kernels. The latter (see Fig. 1 for an example of IASI averaging kernels) characterize the sensitivity of each measurement to the true CO profile, with the remainder of the information provided by the a priori profile:

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a \quad (2)$$

with \hat{x} the retrieved profile, A the averaging kernels matrix, x the true profile and x_a the a priori profile. The rows of the averaging kernel matrix describe the change to the retrieval state at a specific altitude to a perturbation of the true state vector and provide an estimation of the vertical resolution (full width at half maximum). The trace of the matrix, known as the degrees of freedom for signal (DOFS), is a metric used to measure the number of independent pieces of information available from the retrieval (Rodgers, 2000). In the example presented in Fig. 1, the set of averaging kernels presents two maxima (at the surface and around 6 km) and the DOFS number is 2.14. As described in previous papers (e.g. Deeter et al., 2007; Clerbaux et al., 2008b, 2009) the thermal contrast (i.e. the temperature difference between the surface and the first atmospheric layer) is a critical parameter for the understanding of the vertical information contained in the CO product. For the example described here, the measurement is performed at a location associated with a large thermal contrast (close to Los Angeles, USA, morning orbit) and hence

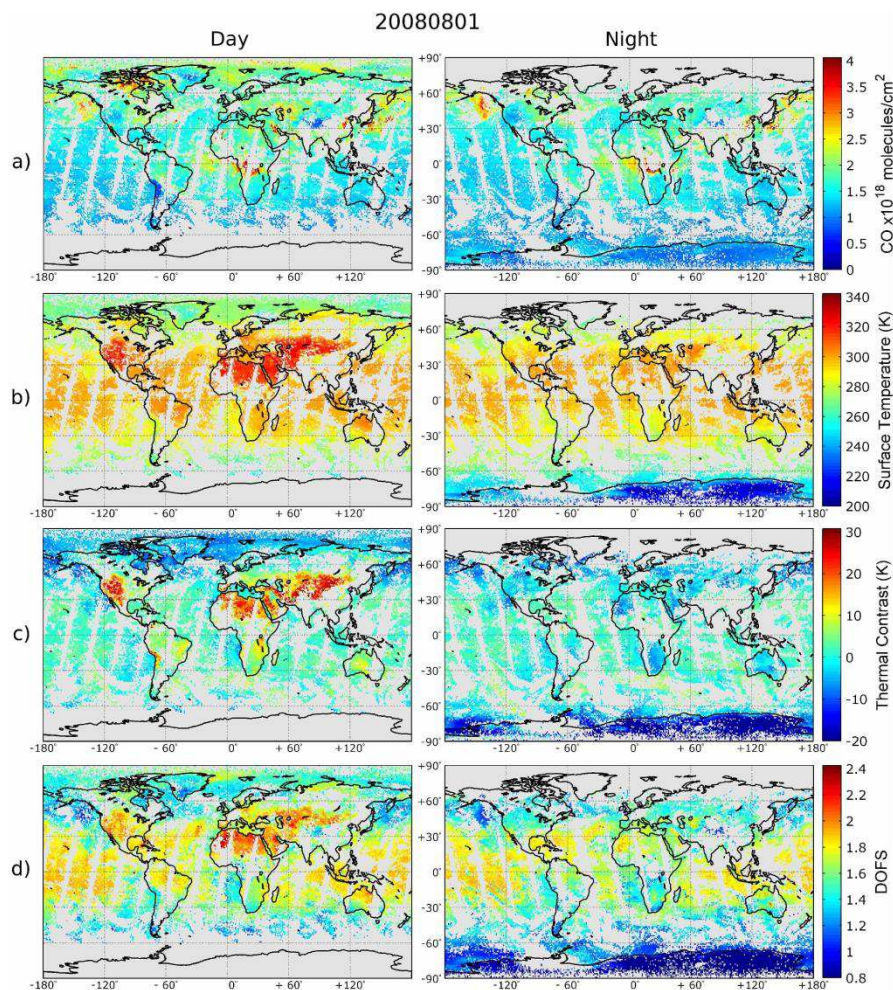


Fig. 2. IASI global distributions on 1 August 2008, for daytime (left) and night time (right). Cloud free observations are binned on a $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ grid. **(a)** CO total column distribution as retrieved by FORLI-CO. **(b)** Surface temperature (available from Eumetsat). **(c)** Thermal contrast as calculated from the difference between surface temperature and the temperature of the first available level of temperature profile. **(d)** Degrees of freedom of the signal (DOFS) as calculated from the averaging kernel matrices.

the averaging kernels corresponding to the lower layers exhibit large sensitivity at the surface. Two independent partial columns can be retrieved for that observation, allowing the separation of the CO concentration in the boundary layer from the mid troposphere. It is worth noting that for other atmospheric conditions, where the thermal contrast is less significant, there is no sensitivity at the surface.

Typically, with the computational power in place at ULB (76 CPUs), the full procedure of ray-tracing, radiative transfer calculations and iterative retrievals allows treating IASI data in near-real-time, only one hour after reception through Eumetcast; thus four hours after the recorded observation. For the study presented here, only cloud free data (see Clerbaux et al., 2009, Sect. 3.2.1) are analysed. Figure 2 il-

lustrates one day (1 August 2008) of IASI CO observations, both for day and night measurements, along with the corresponding surface temperature from IASI Level 2 data, thermal contrast (as calculated from the difference between surface temperature and the temperature of the first available atmospheric level), and DOFS. As expected, differences appear between day and night distributions, which can be linked directly to the thermal contrast, which is much more pronounced during the day than during the night. This reflects onto the DOFS numbers that are larger over areas where the thermal contrast exceeds a few degrees. On the global scale, DOFS values range between 0.8 and 2.4, for this specific day, but these values are also representative for other time periods. Generally, for latitudes above 60° N and

Table 1. Description of current missions and instruments that measure tropospheric CO from nadir TIR radiances. All missions are on polar sun-synchronous orbiting platforms. Specifications are given for the CO thermal IR spectral range only, and for the nadir geometry.

Mission/Plate-form	Plate-form altitude	Spectral coverage (cm^{-1})	References
Agency	Equator crossing time, descend-	Pixel size, Spatial coverage	
Launch date	ing/ascending orbit	Spectral resolution	
Data (L1) availability	Instrument type	Radiometric precision for CO lines (NeDT@280K)	
IASI/MetOp	817 km	645 to 2760	Schluessel et al., 2005
EUMETSAT/CNES	09:30, d	12 km diam \times 4 pixels, swath 2200 km	Turquety et al., 2004
October 2006	FTS, 8461 channels, OPD 2 cm	0.5 cm^{-1} (apodized)	Clerbaux et al., 2007, 2009
May 2007		0.25 K	
MOPITT/TERRA	705 km	2140–2192, 4265–4305	Drummond, 1989
NASA (EOS)	10:30, d	$22 \times 22 \text{ km}$, swath 640 km	Edwards et al., 2004
December 1999	Gas correlation radiometer, 3 bands,	0.04 cm^{-1} (effective)	Deeter et al., 2003, 2007
March 2000	8 channels	0.05 K	
AIRS/AQUA	705 km	650–1136, 1216–1613, 2170–2674	McMillan et al., 2005, 2008
NASA (EOS)	13:30, a	$13.5 \times 13.5 \text{ km} \times 9$ pixels, swath 1650 km	Aumann et al., 2003
May 2002	Grating spectrometer, 2378 channels,	$\sim 1.8 \text{ cm}^{-1}$ (2170–2200 cm^{-1})	
August 2002	resolving power $\lambda/\Delta\lambda = 1200$	0.14 K	
TES/AURA	705 km	652–919(2B1), 923–1160(1B2), 1090–	Beer et al., 2006
NASA (EOS)	10:45, a	1339(2A1) and 1891–2251(1A1)	Bowman et al., 2006
July 2004	FTS, 40 540 channels, OPD 8.45 cm	$0.53 \times 8.3 \text{ km} \times 16$ pixels	Rinsland et al., 2006
August 2004		0.10 cm^{-1} (apodized)	Luo et al., 2007a and b
		1.5 K (@300 K)	Worden et al., 2006

below 60°S only a total column (DOFS around 1) can be retrieved. At mid latitudes, the information ranges between 1.5 and 2, allowing the lower and upper troposphere to be distinguished. For very cold areas, e.g. Antarctic during the night, the retrieval profile consists merely of the a priori profile. On the contrary, for hot locations during the day, the DOFS can provide two pieces of independent information and the retrievals are much less weighted by the a priori.

3 CO correlative measurements distribution

In order to evaluate the FORLI-CO results we use similar products available from other currently operational nadir looking TIR instruments: MOPITT, AIRS and TES. A general description of the different missions and instrument specifications is provided in Table 1.

In the following sections, we present briefly the retrieval methods and the a priori of each instrument. The different spectral resolutions and vertical sensitivities are also discussed. We then focus on comparison of monthly averaged total column CO distributions for three months at different seasons, in order to derive general trends in terms of discrepancies.

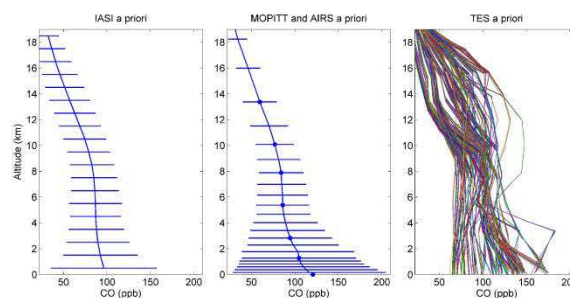


Fig. 3. A priori profiles and standard deviations used in the different retrievals: IASI (left), MOPITT and AIRS (middle) and TES for August (right). For IASI and MOPITT, the standard deviations are from the diagonal elements of the a priori covariance matrix S_a . MOPITT V3 retrievals use the mean profile and covariance matrix values at the seven levels shown by the blue dots. AIRS V5 retrievals do not employ a covariance of the a priori. TES a priori profiles vary in time and location (monthly, $10^\circ \text{lat} \times 60^\circ \text{lon}$ blocks), and only the profiles for the August climatology are presented here. See Fig. 6 in Luo et al. (2007a) for a representation of S_a for TES.

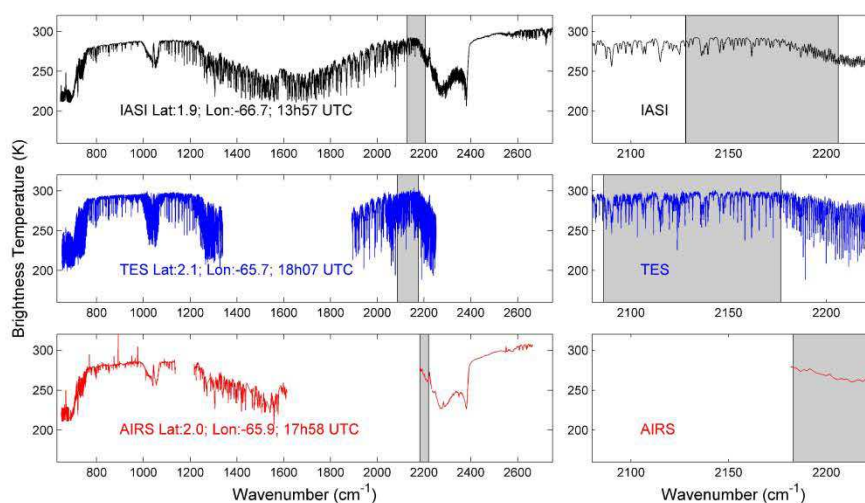


Fig. 4. IASI, TES and AIRS radiance spectra (in brightness temperature) around Northern Brazil, on 1 August 2008. The spectral range used for the CO retrieval are highlighted in grey. For the full spectral range covered by each on the left and zoomed for the CO window on the right (IASI [2143 2181.25]; TES [2086.06 2176.66] and AIRS [2181.49 2221.12]).

3.1 Retrieval methods and a priori

3.1.1 MOPITT

MOPITT uses correlation radiometry (Drummond, 1989) and the terrestrial thermal emission to sound tropospheric CO. More recently, it was also shown that the solar channels provide supplementary information (Deeter et al., 2009). CO retrievals are obtained by using a maximum a posteriori method that incorporates a priori information of the physical and statistical variability of the trace gas distribution in the atmosphere (Pan et al., 1998). For this study we use MOPITT V3 data which are filtered for clouds. This version uses a single CO a priori profile and the covariance matrix is derived from several hundred in situ CO data distributed globally (Deeter et al., 2003) (Fig. 3). It is worth noting that MOPITT V4 products (that were not available at the time of this study) include log-normal statistics for VMR, a modified forward model that handles extreme pollution conditions, and variable a priori profiles. Differences between the global a priori profile used in V3 and the geographically and temporally variable a priori profiles used in V4 might lead to significant differences in CO total column values.

3.1.2 TES

TES nadir Global Survey (GS) observations consist of 16 orbits in a 26 h period; a new GS starts every other day. The along orbit observations are made approximately every 180 km. The TES CO prior information is derived from a year of simulation with the MOZART model (Brasseur et al., 1998). The prior profiles are monthly means in blocks

of $10^\circ \times 60^\circ$ (latitude by longitude) (See Fig. 3, for August). TES CO retrievals apply modified Tikhonov constraints (Kulawik et al., 2008). Spectral micro windows with isolated CO lines are used in CO retrievals (Rinsland et al., 2006). Here we use TES V004 GS data. Data quality and cloud filtering criteria are used to select TES CO total columns according to TES Level 2 Data User's Guide (Osterman et al., 2008).

3.1.3 AIRS

Tropospheric CO abundances are retrieved from AIRS cloud-cleared radiances, utilizing a set of overlapping trapezoidal perturbation functions, similar to the retrieval of all AIRS products (Susskind et al., 2003). Version 5 (V5) AIRS CO retrievals used in this analysis differ from the V4 products used in previous studies (McMillan et al., 2005 and 2008; Warner et al., 2007; Yurganov et al., 2008) in terms of the number of trapezoidal functions and the first guess profile. V5 employs the MOPITT V3 a priori profile as a single global first guess profile (see Fig. 3) with nine trapezoidal perturbation functions (Comer, 2006). The lowest of these nine functions were chosen to closely coincide with the seven reporting levels for MOPITT CO retrievals. Overall, the nine functions better define the shape of the AIRS CO averaging kernels versus the V4 four trapezoidal functions described in McMillan et al. (2008). The nine functions represent coarse supersets of the AIRS 100 layer radiative transfer model. The largest DOFS numbers are 1.5 in AIRS CO retrievals, but typical values are closer to 0.8. For this study, AIRS V5 data were accessed through the NASA Goddard DAAC and filtered with Qual_CO = 0, CloudFrcStd <= 0.8, TSurfStd = >250 K and (PSurfStd - Pbest) < 200 mb.

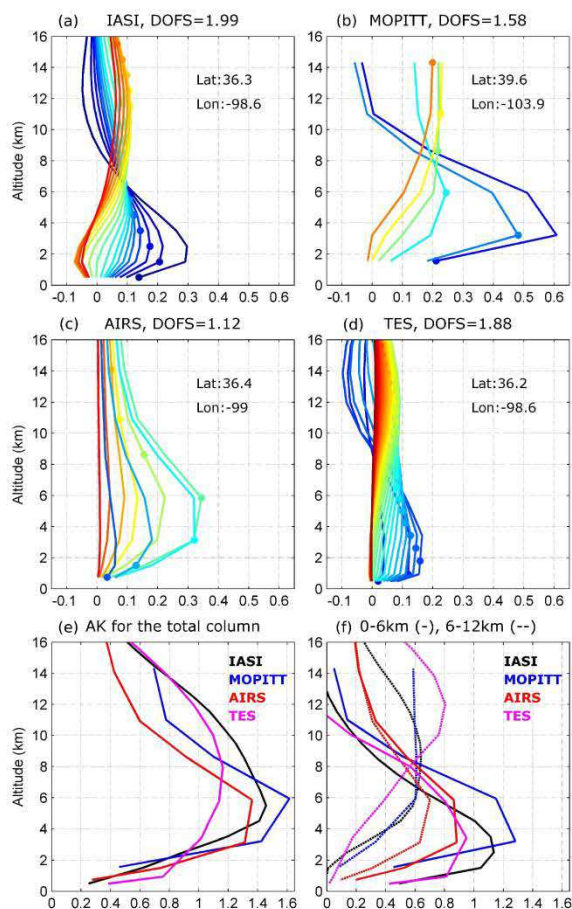


Fig. 5. Averaging kernel matrices and DOFS provided by each retrieval team for IASI (a), MOPITT (b), AIRS (c) and TES (d), for a coincident observation around 36° N–98° W, on 1 August 2008. Each coloured line corresponds to the altitude indicated by the coloured dot. The averaging kernels depend on vertical grid spacing, which is different for each instrument. The subplots (e) and (f) provide the averaging kernels corresponding to total columns and to [0–6 km, plain line] and [6–12 km, dashed line] partial columns.

3.2 Spectral resolution and vertical sensitivity

Spectra recorded above the same area by the three spectrometer type instruments, IASI, TES and AIRS, are presented in Fig. 4, for the full spectral range covered by each device (see Table 1). On the right part of the plot, an enlargement is shown with the spectral window used for the CO retrieval (different for each mission). The data correspond to nadir along track observations only (North Brazil), which explains the relative poor coincidence criteria, and the time of recording differs by a few hours at maximum. From these plots the TES higher spectral resolution is well marked, as are the advantages of AIRS in terms of signal to noise ratio and of

IASI in terms of spectral coverage. As MOPITT is a gas correlation radiometer, the radiance signal is not directly comparable.

Figure 5 illustrates the averaging kernel functions for IASI, MOPITT, AIRS and TES at another coincident observation (over the USA). For each instrument, the raw averaging kernel matrix provided by each team at the different retrieved levels is plotted in Fig. 5a, b, c and d. The functions have similar shapes, with low sensitivity near the surface and maximum sensitivity in the low troposphere (4–6 km), which highlight more the dependencies of the infrared nadir observation to the geophysical scene rather than to the instrument performance. The number of retrieved altitude levels differs markedly for each instrument (IASI=19, MOPITT=7, AIRS=9, TES=67) and is not representative of the vertical resolution. This also explains the different absolute values of the averaging kernels, with higher peak values for thicker layers. For the four instruments, the DOFS are larger than 1, illustrating that the information of the total column comes from more than one layer of the atmosphere. Figure 5e presents the averaging kernel functions corresponding to total columns. For this specific observation, TES is closest to ideal (i.e. closest to 1 on all vertical levels) while the other instruments show important positive deviations in the free troposphere. In Fig. 5f we plotted the averaging kernels for the [0–6 km] and [6–12 km] partial columns. These two partial columns correspond to the two independent atmospheric layers usually identified for IASI or TES, and not accessible from AIRS. In general it is worth noting that the comparison of such averaging kernel functions and DOFS numbers is indicative but not quantitative as the a priori and the retrieval methods are different.

3.3 Comparison of CO total column on the global scale

The comparison is performed on cloud-free monthly averaged data, over a $1^\circ \times 1^\circ$ grid, in order to lower the differences associated with the different temporal and spatial ranges of each satellite. Only daytime observations are shown here.

3.3.1 Direct comparison for August 2008 distributions

Figure 6 presents the CO total column global scale distribution retrieved from IASI, MOPITT, AIRS and TES data available for August 2008. August is an interesting period to observe high CO concentrations in Africa due to intensive agriculture fires. A good agreement is found between the four distributions, with CO total column values ranging from 4×10^{17} molecules/cm² (background level) to more than 4×10^{18} molecules/cm² (fire events), though the IASI background data are lower than those associated with the other distributions. IASI and AIRS results have the best horizontal coverage. The largest concentrations are observed by all four instruments, although with different magnitude, over China (pollution), Africa and South America

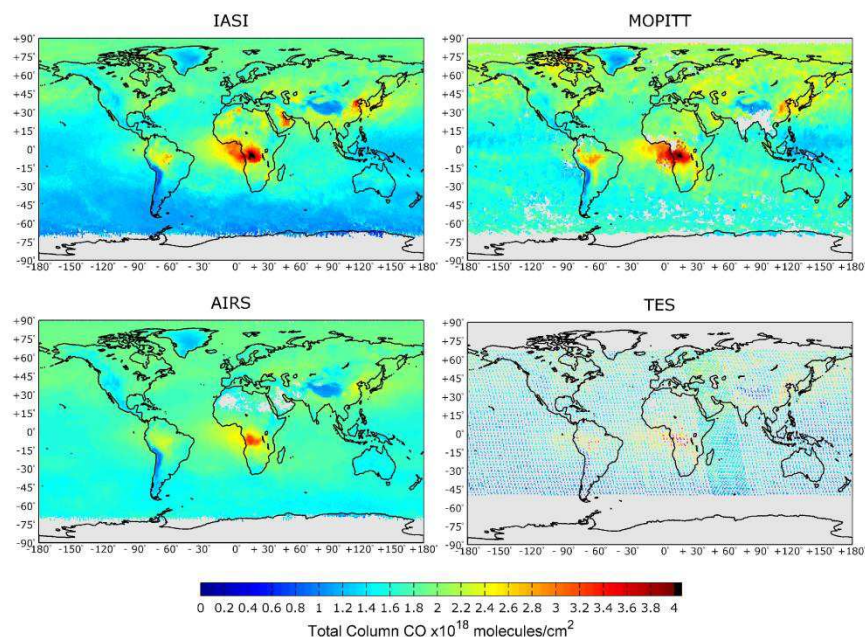


Fig. 6. Averaged IASI, MOPITT, AIRS and TES CO total column distributions, binned on a $1^\circ \times 1^\circ$ grid, for August 2008. All observations are for day-time, and were cloud-filtered following the recommendation provided by each retrieval team. There are more TES data between 30° E and 90° E because data are recorded every 2 days for 26 h.

Table 2. Correlation coefficients for August 2008 (see associated scatter plots in Fig. 7), November 2008 and February 2009. The IASI total columns are adjusted with the MOPITT, AIRS or TES a priori. The coefficients corresponding to the comparison of IASI total columns with TES total columns smoothed by IASI averaging kernel functions are shown in *italic*.

		MOPITT				AIRS				TES [<i>smoothed by AK IASI</i>]		
		Aug 08	Nov 08	Feb 09		Aug 08	Nov 08	Feb 09		Aug 08	Nov 08	Feb 09
Global	Corr. coeff.	0.83	0.87	0.92	Corr. coeff.	0.92	0.91	0.94	Corr. coeff.	0.84 [0.84]	0.79 [0.81]	0.88 [0.82]
	Slope	0.92	0.84	0.83	Slope	1.67	1.45	1.46	Slope	0.88 [0.84]	0.86 [0.84]	0.95 [1.01]
	Intercept	-0.01	0.08	1.16	Intercept	-1.25	-0.91	-0.92	Intercept	0.27 [0.37]	0.28 [0.38]	0.23 [0.22]
Lat [45°, 90°]	Corr. coeff.	0.69	0.66	0.73	Corr. coeff.	0.88	0.85	0.85	Corr. coeff.	0.57 [0.59]	0.40 [0.51]	0.41 [0.36]
	Slope	0.57	0.43	0.47	Slope	1.29	1.13	1.10	Slope	0.49 [0.44]	0.27 [0.33]	0.28 [0.25]
	Intercept	0.74	0.83	0.96	Intercept	-0.48	-0.36	-0.21	Intercept	1.02 [1.12]	1.40 [1.31]	1.66 [1.81]
Lat [15°, 45°]	Corr. coeff.	0.81	0.79	0.76	Corr. coeff.	0.83	0.82	0.83	Corr. coeff.	0.68 [0.74]	0.70 [0.75]	0.69 [0.70]
	Slope	0.96	0.79	0.73	Slope	1.39	1.18	1.19	Slope	0.80 [0.84]	0.72 [0.75]	0.72 [0.76]
	Intercept	0.02	0.20	0.39	Intercept	-0.70	-0.37	-0.37	Intercept	0.44 [0.40]	0.57 [0.56]	0.69 [0.71]
Lat [-15°, 15°]	Corr. coeff.	0.92	0.90	0.89	Corr. coeff.	0.95	0.96	0.94	Corr. coeff.	0.89 [0.90]	0.79 [0.81]	0.85 [0.85]
	Slope	0.86	0.82	0.86	Slope	1.70	1.84	1.75	Slope	0.91 [0.89]	0.85 [0.82]	0.91 [0.90]
	Intercept	0.20	0.31	0.26	Intercept	-1.32	-1.56	-1.35	Intercept	0.24 [0.29]	0.34 [0.46]	0.35 [0.36]
Lat [-45°, -15°]	Corr. coeff.	0.75	0.82	0.72	Corr. coeff.	0.89	0.90	0.80	Corr. coeff.	0.77 [0.75]	0.73 [0.72]	0.69 [0.64]
	Slope	0.75	0.82	0.66	Slope	1.25	1.51	1.11	Slope	0.66 [0.57]	0.72 [0.64]	0.64 [0.51]
	Intercept	0.20	0.15	0.42	Intercept	-0.60	-1.02	-0.42	Intercept	0.50 [0.64]	0.36 [0.51]	0.47 [0.60]

(vegetation fires). IASI and MOPITT distributions show very similar intensities for the African fires. IASI and AIRS have some problems with the inversion of spectra recorded above deserts in North Africa or in the Arabic Peninsula: high con-

centrations are visible for IASI and the data were filtered for AIRS (in light grey, bottom left plot in Fig. 6). In fact, radiative transfer issues occur when processing the IASI data over very cold/icy and very hot/sandy surfaces. The local

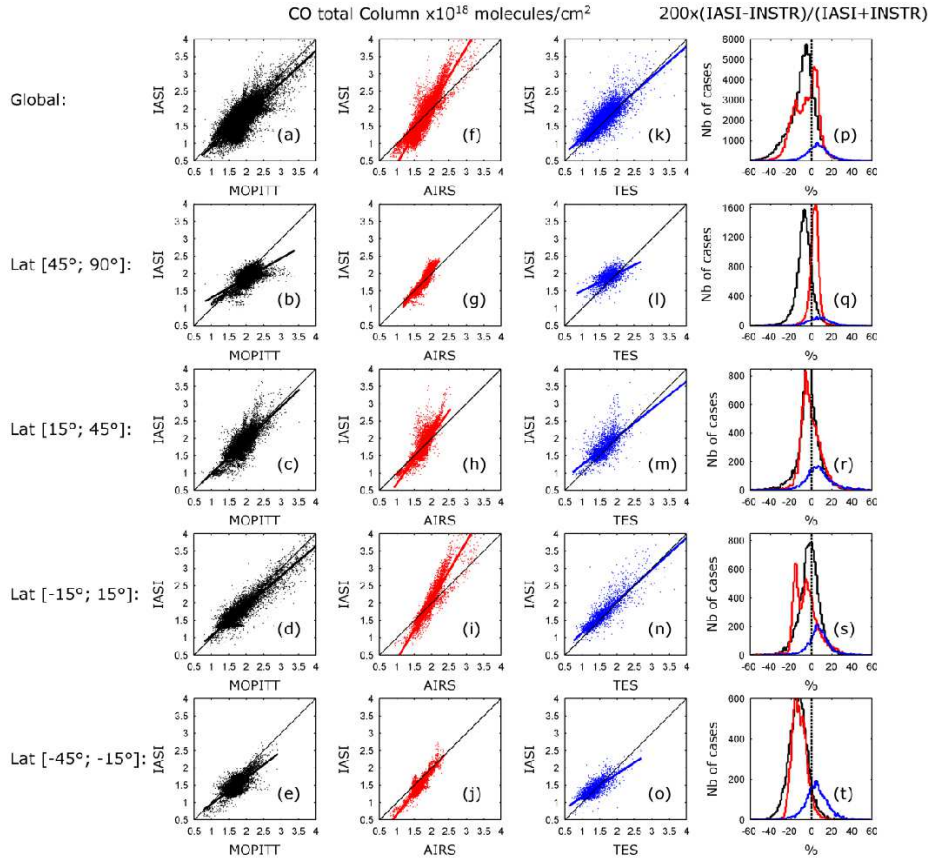


Fig. 7. Scatter plots between IASI and MOPITT, AIRS, TES, for August 2008, for different latitudes bands (see correlation coefficients in Table 2) and histograms of the differences in percent ($200 \times (IASI - INSTR) / (IASI + INSTR)$).

emissivity influences the sensitivity at the surface level and for the moment, emissivity data are not available from Eumetcast.

3.3.2 IASI retrievals adjusted with MOPITT, AIRS or TES a priori

The CO measurements are retrieved using different a priori assumptions and vertical resolutions so we should allow for the differing characteristics of the observing systems. In order to deal with the different a priori, we followed the method proposed by Rodgers and Connor (2003) and presented in more detail for TES and MOPITT comparisons in Luo et al. (2007a).

Here, the IASI columns have been adjusted according to the a priori used by MOPITT, AIRS or TES. To perform the comparison, monthly averaged data are binned in a $1^\circ \times 1^\circ$ grid, so for each point of the grid, the Eq. (3) is applied to the IASI mean retrieved CO profile to obtain the IASI

adjusted profile and then the total column is derived:

$$\mathbf{x}_{\text{adjusted}}^{\text{IASI}} = \mathbf{x}_{\text{retrieved}}^{\text{IASI}} + (\mathbf{A}^{\text{IASI}} - \mathbf{I})(\mathbf{x}_a^{\text{IASI}} - \mathbf{x}_a^{\text{INSTR}}) \quad (3)$$

With $\mathbf{x}_{\text{adjusted}}^{\text{IASI}}$ the IASI profile adjusted to the INSTR (i.e. MOPITT, AIRS or TES) a priori, $\mathbf{x}_{\text{retrieved}}^{\text{IASI}}$ the IASI retrieved profile, \mathbf{A}^{IASI} the IASI averaging kernel matrix, $\mathbf{x}_a^{\text{IASI}}$ and $\mathbf{x}_a^{\text{INSTR}}$ the a priori profile used for the IASI and the INSTR retrievals.

The two above-mentioned papers also recommend to smooth the CO profile of the instrument with the higher profiling capability with the averaging kernel functions of the instrument with the lowest vertical sensitivity. The equation to obtain the smoothed column is:

$$\mathbf{x}_{\text{smoothed}}^{\text{high}} = \mathbf{a}^{\text{low}} \mathbf{x}_{\text{retrieved}}^{\text{high}} + (\mathbf{I} - \mathbf{a}^{\text{low}}) \mathbf{x}_a^{\text{low}} \quad (4)$$

With $\mathbf{x}_{\text{smoothed}}^{\text{high}}$ the high resolution column smoothed by the averaging kernels of the low resolution instrument, \mathbf{a}^{low}

the low resolution instrument averaging kernel vector corresponding to the total column, $x_{\text{retrieved}}^{\text{high}}$ the high resolution retrieved profile and x_a^{low} the low resolution a priori profile.

Some extended tests were performed to compare IASI and TES CO total columns using Eq. (4), in order to take the averaging kernel information into account. Because of TES's better spectral resolution, the TES CO profiles were smoothed by the IASI averaging kernel information. It is worth noting that even with a higher intrinsic vertical sensitivity TES can exhibit in some cases (e.g. see Fig. 5), depending on the geographic situation, a smaller DOFS than IASI because of the different a priori assumptions that lead to different averaging kernels and DOFS. As we lacked some of the averaging kernel information for other instruments, as the vertical resolutions are more similar, and as the impact on the coefficient correlations for TES-IASI was found to be limited (see Table 2, italic values), we restricted the application of Eq. (4) to TES. It is worth mentioning that this impact is limited because we compare integrated columns, and that it has a much larger impact when profiles are directly compared.

Figure 7 shows scatter plots of the averaged CO total columns ($1^\circ \times 1^\circ$ gridded) for IASI as compared to MOPITT, AIRS and TES (without smoothing), for August 2008, for different latitude bands (Global= $[-90^\circ; 90^\circ]$, $[45^\circ; 90^\circ]$, $[15^\circ; 45^\circ]$, $[-15^\circ; 15^\circ]$ and $[-45^\circ; -15^\circ]$). Also shown are the histograms of the relative differences in percent ($200 \times (\text{IASI}-\text{INSTR})/(\text{IASI}+\text{INSTR})$, with $\text{INSTR}=\text{MOPITT}$, AIRS or TES) averaged the same way. Other periods/seasons have also been examined. Table 2 provides a summary of the correlation coefficients, the slope, and the intercept of the linear regression line, that were obtained from the analysis of August 2008, November 2008 and February 2009. As can be seen from Table 2, the correlation is generally good, although some biases are observed. For data averaged over all latitudes, the correlation coefficients averaged over the three months investigated are 0.87 (IASI/MOPITT), 0.92 (IASI/AIRS) and 0.84 (IASI/TES). This indicates that the four instruments can capture the dynamic range of the CO concentration with a good agreement. In the equatorial region (latitudes $[-15^\circ; 15^\circ]$) MOPITT, AIRS and TES are very well correlated with IASI, with correlation coefficients of 0.90, 0.95 and 0.84 respectively. However MOPITT is higher than IASI with an average bias of 9.6% for data averaged over all latitudes (11.4% for latitudes $[45^\circ; 90^\circ]$ and 1.1% for latitudes $[-15^\circ; 15^\circ]$) (see Fig. 7p, q and s for August 2008). This is consistent with a positive bias reported for MOPITT (V3 data) as shown in Emmons et al. (2009). AIRS shows a significant bias for the southern latitudes: 13.5% higher than IASI between 15° S and 45° S but is in close agreement with IASI between 45° N and 90° N (see Fig. 7t and q for August 2008). In other regions, AIRS CO data seems to be larger than IASI for weak concentrations but lower for high concentrations (Fig. 7f, h and i for August 2008) indicating a more restricted dy-

namic range for AIRS retrievals due to the lower DOFS for AIRS CO as has been previously noted (Warner et al., 2007; Yurganov et al., 2008). On the contrary, TES is lower than IASI in all the latitude regions (6.2%, see Fig. 7p for August 2008).

4 Summary and conclusions

This paper presents a first assessment of the capabilities of IASI to measure CO on the global scale. The results presented here were obtained with the FORLI-CO algorithm, a near real time processing code that delivers atmospheric profiles of CO about four hours after the observation. Several months of observations have been analyzed, and both total column and coarse vertical profiles have been measured on the global scale, twice a day. CO quick-look distributions maps with different projections can be viewed from the LAT-MOS website at <http://iasi-chem.aero.jussieu.fr>. The vertical information available is strongly dependent on ground temperature, local emissivity and thermal contrast, with the daytime data being more useful for studying the atmospheric composition in the lowest parts of the atmosphere. Several radiative transfer issues remain when processing the IASI data over very cold/icy and very hot/sandy surfaces, as local emissivity data are not yet available from Eumetcast.

This paper compares the IASI CO total column global distribution, averaged over one month and for different seasons, with similar CO products provided by other space-borne instruments that also exploit the thermal infrared spectral range to sound the atmosphere. In the Northern Hemisphere and in the equatorial region, the comparisons show an agreement better than $\sim 7\%$ between IASI and the three other IR sounders. In the Southern Hemisphere, under 15° S, IASI is about 11% lower on average than MOPITT and AIRS. For large concentrations of CO, such as in fire events for August 2008, IASI and MOPITT are in good agreement, but AIRS is systematically lower than IASI ($\sim 17\%$), likely due to the combination of AIRS coarser spectral resolution and larger retrieval footprint. TES shows a similar distribution structure but is slightly lower than IASI, for all latitudes bands. Further studies are needed to improve first guess a priori profiles, climatologies, statistics, and ancillary data. There is also a need to provide better knowledge of the Earth's surface temperature, local emissivity, atmospheric temperature and humidity profiles. Such improvements would improve the accuracy of CO satellite remote sensing retrievals, especially for nadir viewing thermal sounding instruments such as TES, AIRS, MOPITT and IASI.

Acknowledgements. IASI has been developed and built under the responsibility of the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES, France). It is flown onboard the MetOp satellites as part of the Eumetsat Polar System. The IASI L1 data are received through the Eumetcast near real time data distribution service. IASI L1 and L2 data are stored in the Ether French atmospheric database

(<http://ether.ipsl.jussieu.fr>). The research in France is conducted with the financial support of CNES. The research in Belgium was funded by the "Actions de Recherche Concertées" (Communauté Française), the Fonds National de la Recherche Scientifique (FRS-FNRS F.4511.08), the Belgian State Federal Office for Scientific, Technical and Cultural Affairs and the European Space Agency (ESA-Prodex C90-327). Analysis of TES measurements at NASA Langley Research Center is supported by NASA's Upper Atmospheric Chemistry and Modeling Program (ACMAP) and Upper Atmosphere Research Program (UARP). Analysis of AIRS CO retrievals is supported by the AIRS Project (JPL) and NASA's Tropospheric Chemistry Program. The authors are grateful to INSU for publication support.

Edited by: A. Richter



The publication of this article is financed by CNRS-INSU.

References

- Aumann, H. H., Chahine, M. T., Gautier, C., Goldberg, M. D., Kalnay, E., McMillin, L. M., Revercomb, H., Rosenkranz, P. W., Smith, W. L., Staelin, D. H., Strow, L. L., and Susskind, J.: AIRS/AMSU/HSB on the Aqua mission: Design, science objectives, data products, and processing systems, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 41, 2, 253–264, 2003.
- Barret, B., Hurtmans, D., Carleer, M., Mazière, M. D., Mahieu, E., and Coheur, P.-F.: Line narrowing effect on the retrieval of HF and HCL vertical profiles from ground-based FTIR measurements, *J. Quant. Spectrosc. Rad.*, 95, 499–519, 2005.
- Barret, B., Ricaud, P., Santee, M. L., Attie, J.-L., Urban, J., Le Flochmoen, E., Berthet, G., Murtagh, D., Eriksson, P., Jones, A., De La Noë, J., Dupuy, E., Froidevaux, L., Livesey, N. J., Waters, J. W., and Filipiak, M. J.: Intercomparisons of trace gases profiles from the Odin/SMR and Aura/MLS limb sounders, *J. Geophys. Res.*, 111, D21302, doi:10.1029/2006JD007305, 2006.
- Beer, R.: TES on the Aura mission: scientific objectives, measurements, and analysis overview, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 44, 1102–1105, 2006.
- Brasseur, G., Hauglustaine, D., Walters, S., Rasch, R., Müller, J.-F., Granier, C., and Tie, X.: MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 103(D21), 28265–28289, 1998.
- Buchwitz, M., de Beek, R., Bramstedt, K., et al.: Global carbon monoxide as retrieved from SCIAMACHY by WFM-DOAS, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 1945–1960, 2004, <http://www.atmos-chem-phys.net/4/1945/2004/>.
- Buchwitz, M., Khlystova, I., Bovensmann, H., and Burrows, J. P.: Three years of global carbon monoxide from SCIAMACHY: comparison with MOPITT and first results related to the detection of enhanced CO over cities, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2399–2411, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/2399/2007/>.
- Bowman, K. W., Rodgers, C. D., Kulawik, S. S., Worden, J., Sarkissian, E., Osterman, G., Steck, T., Ming Lou, Eldering, A., Shephard, M., Worden, H., Lampel, M., Clough, S., Brown, P., Rinsland, C., Gunson, M., and Beer, R.: Tropospheric Emission Spectrometer: Retrieval method and error analysis, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 44, 1297–1307, 2006.
- Boynard, A., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Turquety, S., George, M., Hadji-Lazaro, J., Keim, C., and Mayer-Arneke, J.: Measurements of total and tropospheric ozone from the IASI instrument: comparison with satellite and ozonesonde observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6255–6271, 2009.
- Clarisse, L., Coheur, P.-F., Prata, A. J., Hurtmans, D., Razavi, A., Phulpin, T., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Tracking and quantifying volcanic SO₂ with IASI, the September 2007 eruption at Jebel at Tair, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7723–7734, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/7723/2008/>.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Payan, S., Camy-Peyret, C., Wang, J., Edwards, D., and Luo, M.: Retrieval of CO from nadir remote-sensing measurements in the infrared by use of four different inversion algorithms, *Appl. Opt.*, 41, 33, 7068–7078, 2002.
- Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Barret, B., Carleer, M., Colin, R., Semeniuk, K., McConnell, J. C., Boone, C., and Bernath, P.: Carbon monoxide distribution from the ACE-FTS solar occultation measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L16S01, doi:10.1029/2005GL022394, 2005.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Turquety, S., George, M., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Wespes, C., Herbin, H., Blumstein, D., Tournier, B., and Phulpin, T.: The IASI/MetOp mission: first observations and highlight of its potential contribution to the GMES Earth observation component, *Space Research Today (COSPAR Inf. Bull.)*, 168, 19–24, 2007.
- Clerbaux, C., George, M., Turquety, S., Walker, K. A., Barret, B., Bernath, P., Boone, C., Borsdorff, T., Cammas, J. P., Catoire, V., Coffey, M., Coheur, P.-F., Deeter, M., De Mazière, M., Drummond, J., Duchatelet, P., Dupuy, E., de Zafra, R., Eddouinia, F., Edwards, D. P., Emmons, L., Funke, B., Gille, J., Griffith, D. W. T., Hannigan, J., Hase, F., Höpfner, M., Jones, N., Kagawa, A., Kasai, Y., Kramer, I., Le Flochmoen, E., Livesey, N. J., López-Puertas, M., Luo, M., Mahieu, E., Murtagh, D., Nédélec, P., Pazmino, A., Pumphrey, H., Ricaud, P., Rinsland, C. P., Robert, C., Schneider, M., Senten, C., Stiller, G., Strandberg, A., Strong, K., Sussmann, R., Thouret, V., Urban, J., and Wiacek, A.: CO measurements from the ACE-FTS satellite instrument: data analysis and validation using ground-based, airborne and spaceborne observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2569–2594, 2008a, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/2569/2008/>.
- Clerbaux, C., Edwards, D. P., Deeter, M., Emmons, L., Lamarque, J.-F., Tie, X. X., Massie, S. T., and Gille, J.: Carbon monoxide pollution from cities and urban areas observed by the Terra/MOPITT mission, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03817, doi:10.1029/2007GL032300, 2008b.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Herbin, H., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/METOP sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, 2009.

- <http://www.atmos-chem-phys.net/9/6041/2009/>.
- Coheur, P.-F., Barret, B., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Retrieval and characterization of ozone vertical profiles from a thermal infrared nadir sounder, *J. Geophys. Res.*, 110, D24303, doi:10.1029/2005JD005845, 2005.
- Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5655–5667, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/5655/2009/>.
- Comer, M. M.: Retrieving Carbon Monoxide Abundances from the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS), Ph.D. Dissertation, University of Maryland Baltimore County, USA, 2006.
- Deeter, M. N., Emmons, L. K., Francis, G. L., Edwards, D. P., Gille, J. C., Warner, J. X., Khatatov, B., Ziskin, D., Lamarque, J.-F., Ho, S.-P., Yudin, V., Attié, J.-L., Packman, D., Chen, J., Mao, D., and Drummond, J. R.: Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4399, doi:10.1029/2002JD003186, 2003.
- Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., and Drummond, J. R.: Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D24306, doi:10.1029/2007JD008929, 2007.
- Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., and Drummond, J. R.: CO retrievals based on MOPITT near-infrared observations, *J. Geophys. Res.*, 114, D04303, doi:10.1029/2008JD010872, 2009.
- de Laat, A. T. J., Gloudemans, A. M. S., Schrijver, H., van den Broek, M. M. P., Meirink, J. F., Aben, I., and Krol, M.: Quantitative analysis of SCIAMACHY carbon monoxide total column measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L07807, doi:10.1029/2005GL025530, 2006.
- de Laat, A. T. J., Gloudemans, A. M. S., Aben, I., Krol, M., Meirink, J. F., van der Werf, G. R., and Schrijver, H.: SCIAMACHY carbon monoxide total columns: statistical evaluation and comparison with CTM results, *J. Geophys. Res.*, 112, D12310, doi:10.1029/2006JD008256, 2007.
- Drummond, J. R.: Novel correlation radiometer: the length-modulated radiometer, *Appl. Opt.*, 28, 2451–2452, 1989.
- Duncan, B. N. and Logan, J. A.: Model analysis of the factors regulating the trends and variability of carbon monoxide between 1988 and 1997, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7389–7403, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/7389/2008/>.
- Edwards, D. P., Emmons, L. K., Hauglustaine, D. A., Chu, A., Gille, J. C., Kaufman, Y. J., Pétron, G., Yurganov, L. N., Giglio, L., Deeter, M. N., Yudin, V., Ziskin, D. C., Warner, J., Lamarque, J.-F., Francis, G. L., Ho, S. P., Mao, D., Chan, J., and Drummond, J. R.: Observations of Carbon Monoxide and Aerosol From the Terra Satellite: Northern Hemisphere Variability, *J. Geophys. Res.*, 109, D24202, doi:10.1029/2004JD004727, 2004.
- Emmons, L. K., Deeter, M. N., Gille, J. C., al.: Validation of Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) CO retrievals with aircraft in situ profiles, *J. Geophys. Res.*, 109, D03309, doi:10.1029/2003JD004101, 2004.
- Emmons, L. K., Pfister, G. G., Edwards, D. P., Gille, J. C., Sachse, G., Blake, D., Wofsy, S., Gerbig, C., Matross, D., and Nédélec, P.: Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) validation exercises during summer 2004 field campaigns over North America, *J. Geophys. Res.*, 112, D12S02, doi:10.1029/2006JD007833, 2007.
- Emmons, L. K., Edwards, D. P., Deeter, M. N., Gille, J. C., Campos, T., Nédélec, P., Novelli, P., and Sachse, G.: Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) validation through 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1795–1803, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/1795/2009/>.
- Frankenberg, C., Platt, U., and Wagner, T.: Retrieval of CO from SCIAMACHY onboard ENVISAT: detection of strongly polluted areas and seasonal patterns in global CO abundances, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1639–1644, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1639/2005/>.
- Funke, B., López-Puertas, M., Bermejo-Pantaleón, D., von Clarmann, T., Stiller, G. P., Höpfner, M., Grabowski, U., and Kaufmann, M.: Analysis of nonlocal thermodynamic equilibrium CO 4.7 μm fundamental, isotopic, and hot band emissions measured by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding on Envisat, *J. Geophys. Res.*, 112, D11305, doi:10.1029/2006JD007933, 2007.
- Hurtmans, D. et al.: FORLI: A Fast Operational Retrieval on Layers code for IASI, in preparation, 2009.
- Kulawik, S. S., Bowman, K. W., Luo, M., Rodgers, C. D., and Jourdain, L.: Impact of nonlinearity on changing the a priori of trace gas profile estimates from the Tropospheric Emission Spectrometer (TES), *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3081–3092, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/3081/2008/>.
- Kurylo, M.: Network for the detection of stratospheric change (NDSC), in Remote sensing of atmospheric chemistry: Proceedings of the Meeting, Orlando, FL, April 1–3, A93-31376 11-35, 168–174, 1991.
- Livesey, N. J., Filipiak, M. J., Froidevaux, L., et al.: Validation of Aura Microwave Limb Sounder O₃ and CO observations in the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S02, doi:10.1029/2007JD008805, 2008.
- Logan, J., Prather, M. J., Wofsy, S. C., and McElroy, M. B.: Tropospheric chemistry: A global perspective, *J. Geophys. Res.*, 86, 7210–7254, 1981.
- Luo, M., Rinsland, C. P., Rodgers, C. D., Logan, J. A., Worden, H., Kulawik, S., Eldering, A., Goldman, A., Shephard, M. W., Gunson, M., and Lampel, M.: Comparison of carbon monoxide measurements by TES and MOPITT: Influence of a priori data and instrument characteristics on nadir atmospheric species retrievals, *J. Geophys. Res.*, 112, D09303, doi:10.1029/2006JD007663, 2007a.
- Luo, M., Rinsland, C., Fisher, B., Sachse, G., Diskin, G., Logan, J., Worden, H., Kulawik, S., Osterman, G., Eldering, A., Herman, R., and Shephard, M.: TES carbon monoxide validation with DACOM aircraft measurements during INTEX-B 2006, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S48, doi:10.1029/2007JD008803, 2007b.
- McMillan, W. W., Barnett, C., Strow, L., Chahine, M. T., McCourt, M. L., Warner, J. X., Novelli, P. C., Korontzi, S., Maddy, E. S., and Datta, S.: Daily global maps of carbon monoxide from NASA's Atmospheric Infrared Sounder, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L11801, doi:10.1029/2004GL021821, 2005.
- McMillan, W. W., Warner, J. X., Comer, M. M., Maddy, E., Chu, A., Sparling, L., Eloranta, E. W., Hoff, R. M., Sachse, G., Barnett, C., Razenkov, I. A., and Wolf, W.: AIRS views of transport from 12–22 July 2004 Alaskan/Canadian fires: Correlation of AIRS CO and MODIS AOD with forward trajectories and comparison of AIRS CO retrievals with DC-8 in situ measurements during INTEX-A/ICARTT, *J. Geophys. Res.*, 113, D20301, doi:10.1029/2007JD009711, 2008.

- Nedelec, P., Cammas, J. P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J. M., Legrand, C., Abounel, C., Lecoœur, F., Cayez, G., and Marizy, C.: An improved infra-red carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: Technical validation and first scientific results of the MOZAIC III program, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1551–1564, 2003, <http://www.atmos-chem-phys.net/3/1551/2003/>.
- Nedelec, P., Thouret, V., Brioude, J., Sauvage, B., Cammas, J.-P., and Stohl, A.: Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L14807, doi:10.1029/2005GL023141, 2005.
- Novelli, P., Masarie, K., and Lang, P.: Distributions and recent changes of carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 103, D15, 19015–19033, 1998.
- Osterman, G., Bowman, K., Eldering, A., et al.: TES Level 2 Data User's Guide, v3.1, JPL D-38042, 31 July, 2008.
- Pan, L., Gille, J., Edwards, D., Bailey, P., and Rodgers, C.: Retrieval of tropospheric carbon monoxide for the MOPITT experiment, *J. Geophys. Res.*, 103(D24), 32277–32290, 1998.
- Pougachev, N. S. and Rinsland, C. P.: Spectroscopic study of the seasonal variation of carbon monoxide vertical distribution above Kitt Peak, *J. Geophys. Res.*, 100, 1409–1416, 1995.
- Pougachev, N., August, T., Calbet, X., Hultberg, T., Odutye, O., Schlüssel, P., Stiller, B., Germain, K. S., and Bingham, G.: IASI temperature and water vapor retrievals – error assessment and validation, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6453–6458, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/6453/2009/>.
- Pumphrey, H. C., Filipiak, M. J., Livesey, N. J., Schwartz, M. J., Boone, C., Walker, K. A., Bernath, P., Ricaud, P., Barret, B., Clerbaux, C., Jarnot, R. F., Manney, G. L., and Waters, J. W.: Validation of middle-atmosphere carbon monoxide retrievals from Microwave Limb Sounder on Aura, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S38, doi:10.1029/2007JD008723, 2007.
- Razavi, A., Clerbaux, C., Wespes, C., Clarisse, L., Hurtmans, D., Payan, S., Camy-Peyret, C., and Coheur, P.-F.: Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7889–7899, 2009.
- Rinsland, C. P., Luo, M., Logan, J. A., Beer, R., Worden, H., Kulawik, S. S., Rider, D., Osterman, G., Gunson, M., Eldering, A., Goldman, A., Shephard, M., Clough, S. A., Rodgers, C., Lampel, M., and Chiou, L.: Nadir measurements of carbon monoxide (CO) distributions by the tropospheric emission spectrometer instrument onboard the Aura spacecraft: Overview of analysis approach and examples of initial results, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L22806, doi:10.1029/2006GL027000, 2006.
- Rinsland, C. P., Luo, M., Shephard, M. W., Clerbaux, C., Boone, C. D., Bernath, P. F., Chiou, L., and Coheur, P. F.: Tropospheric emission spectrometer (TES) and atmospheric chemistry experiment (ACE) measurements of tropospheric chemistry in tropical southeast Asia during a moderate El Niño in 2006, *J. Quant. Spectrosc. Rad.*, 109, 1931–1942, doi:10.1016/j.jqsrt.2007.12.020, 2008.
- Rodgers, C. D.: Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice, *Ser. Atmos. Oceanic Planet. Phys.*, 2, World Sci., Hackensack, N. J., 2000.
- Rodgers, C. D. and B. J. Counor, Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4116, doi:10.1029/2002JD002299, 2003.
- Schuessel, P., Hultberg, T. H., Phillips, P. L. T., August, T., and Calbet, X.: The operational IASI Level 2 processor, *Adv. Space Res.*, 36, 982, 2005.
- Susskind, J., Barnet, C. D., and Blaisdell, J. M.: Retrieval of atmospheric and surface parameters from AIRS/AMSU/HSB data in the presence of clouds, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 41, 390–409, 2003.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Hauglustaine, D. A., Clough, S. A., Cassé, V., Schlüssel, P., and Mégie, G.: Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, *J. Geophys. Res.*, 109, D21301, doi:10.1029/2004JD004821, 2004.
- Turquety, S., Clerbaux, C., Law, K., Coheur, P.-F., Cozic, A., Szopa, S., Hauglustaine, D., Hadji-Lazaro, J., Gloudemans, A., Schrijver, H., Boone, C. D., Bernath, P. F., and Edwards, D.: Analysis of CO transport from Asia using nadir (MOPITT, SCIAMACHY) and solar occultation (ACE-FTS) satellite measurements with global modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5187–5204, 2008, <http://www.atmos-chem-phys.net/8/5187/2008/>.
- Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Josset, D., Tsamalis, C.: Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals: analysis of the summer 2007 Greek fires, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4897–4913, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/4897/2009/>.
- Velazco, V., Wood, S. W., Sinnhuber, M., Kramer, I., Jones, N. B., Kasai, Y., Notholt, J., Warneke, T., Blumenstock, T., Hase, F., Murcray, F. J., and Schrems, O.: Annual variation and global distribution of strato-mesospheric carbon monoxide measured by ground-based Fourier transform infrared spectroscopy, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1305–1312, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/1305/2007/>.
- Warner, J., McCourt Comer, M., Barnet, C. D., McMillan, W. W., Wolf, W., Maddy, E., and Sachse, G.: A comparison of satellite tropospheric carbon monoxide measurements from AIRS and MOPITT during INTEX-A, *J. Geophys. Res.*, 112, D12S17, doi:10.1029/2006JD007925, 2007.
- Wespes, C., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Santee, M. L., Martin, R. V., and Coheur, P.-F.: Global distributions of nitric acid from IASI/MetOP measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7949–7962, 2009.
- Worden, H., Beer, R., Bowman, K. W., Fisher, B., Luo, M., Rider, D., Sarkissian, E., Tremblay, D., and Zong, J.: TES Level 1 Algorithms: Interferogram Processing, Geolocation, Radiometric, and Spectral Calibration, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 44, 1288–1296, 2006.
- Yurganov, L. N., Blumenstock, T., Grechko, E. I., Hase, F., Hyer, E. J., Kasischke, E. S., Koike, M., Kondo, Y., Kramer, I., Leung, F.-Y., Mahieu, E., Mellqvist, J., Notholt, J., Novelli, P. C., Rinsland, C. P., Scheel, H. E., Schulz, A., Strandberg, A., Sussmann, R., Tanimoto, H., Velazco, V., Zander, R., and Zhao, Y.: A quantitative assessment of the 1998 carbon monoxide emission anomaly in the Northern Hemisphere based on total column and surface concentration measurements, *J. Geophys. Res.*, 109, D15305, doi:10.1029/2004JD004559, 2004.
- Yurganov, L. N., Duchatelet, P., Dzhola, A. V., Edwards, D. P., Hase, F., Kramer, I., Mahieu, E., Mellqvist, J., Notholt, J., Novelli, P. C., Scheel, H.-E., Schneider, M., Schulz, A., Strandberg, A., Sussmann, R., Tanimoto, H., Velazco, V., Drummond, J. R.,

- and Gille, J. C.: Increased Northern Hemispheric CO burden in the troposphere in 2002 and 2003 detected from the ground and from a satellite, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 563–573, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/563/2005/>.
- Yurganov, L. N., McMillan, W. W., Dzhola, A. V., Grechko, E. I., Jones, N. B., and van der Werf, G. R.: Global AIRS and MO-PITT CO measurements: Validation, comparison, and links to biomass burning variations and carbon cycle, *J. Geophys. Res.*, 113, D09301, doi:10.1029/2007JD009229, 2008.
- Zander, R., Mahieu, E., Demoulin, P., Duchatelet, P., Roland, R., Servais, C., De Mazière, M., Reimann, S., and Rinsland, C. P.: Our changing atmosphere: Evidence based on long-term infrared solar observations at the Jungfraujoch since 1950, *Sci. Total Environ.*, 391, 184–195, doi:10.1016/j.scitotenv.2007.10.018, 2008.
- Zhou, D. K., Smith, W. L., Larar, A. M., Liu, X., Taylor, J. P., Schlüssel, P., Strow, L. L., and Mango, S. A.: All weather IASI single field-of-view retrievals: case study – validation with JAIVEx data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2241–2255, 2009.

4.2.3 Autres résultats de validation publiés suite à l'article

Suite à cet article de 2009, d'autres exercices de validation des données FORLI-CO ont été menés et publiés. Dans la section suivante, nous présentons un résumé de ces publications. Les différents résultats sont rassemblés dans la Table 4.3.

4.2.3.1 Validation avec des mesures avion lors de la campagne POLARCAT

IASI carbon monoxide validation over the Arctic during POLARCAT spring and summer campaigns

Pommier, M., Law, K. S., Clerbaux, C., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Schlager, H., Ancellet, G., Paris, J.-D., Nédélec, P., Diskin, G. S., Podolske, J. R., Holloway, J. S., and Bernath, P., *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10655-10678, doi:10.5194/acp-10-10655-2010, 2010.

Données : Comparaison entre les produits FORLI-CO (colonnes totales, colonnes partielles 0-5 km et profils) et les profils avion colocalisés mesurés lors des campagnes POLARCAT au printemps et à l'été 2008.

Critères de colocalisation : $\pm 0.2^\circ$; ± 1 h

Résultats : Pour les profils: différences inférieures à 17% (~ 10 ppbv) pour le printemps et pouvant atteindre 20% l'été (lors de cas pollués, en-dessous de 8 km).

Pour les colonnes totales : différences entre 1 et 5% en été. Maximum de 12% de différence en été. Coefficients de corrélation entre 0.15 et 0.74 (printemps) et entre 0.26 et 0.84 (été). Meilleures corrélations : sur la mer au printemps (0.73) et sur la terre en été (0.69).

Pour les colonnes partielles : coefficients de corrélation entre 0.47 et 0.77 (printemps) et entre 0.66 et 0.88 (été). Meilleures corrélations : sur la mer au printemps (0.78) et sur la terre en été (0.81).

Conclusion : IASI est capable d'observer le transport à longue distance du CO en Arctique. Les panaches de pollution sont détectés, une information sur leur structure verticale peut être

fournie. La détection de fortes valeurs de CO lors d'évènement comme des feux est plus difficile au-dessus de la glace et de la neige car IASI est moins sensible près de la surface quand le contraste thermique est faible.

4.2.3.2 *Validation avec des mesures avion MOZAIC*

Retrieval of MetOp-A/IASI CO profiles and validation with MOZAIC data

De Wachter, E., Barret, B., Le Flochmoën, E., Pavelin, E., Matricardi, M., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., George, M., Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Nedelec, P., and Cammas, J. P., Atmos. Meas. Tech., 5, 2843-2857, doi:10.5194/amt-5-2843-2012, 2012.

Données: Les colonnes partielles (Surface-480 hPa ; 480-225 hPa) et profils IASI inversés par deux algorithmes différents, FORLI-CO et SOFRID (Laboratoire d'Aérodologie), sont comparés avec les mesures avion MOZAIC, pour la période 2008-2009.

Critères de colocalisation : $\pm 1^\circ$; ± 12 h

Résultats (relatifs à FORLI): les coefficients de corrélation entre IASI et MOZAIC sont de l'ordre de 0.8 dans la basse troposphère et de 0.7 dans la haute troposphère.

IASI voit la variabilité saisonnière au-dessus des sites de Francfort et de Windhoek.

Biais positif de FORLI (basse troposphère) de 13% par rapport aux données MOZAIC à Francfort (les concentrations de CO dans la couche limite polluée sont redistribuées vers la haute troposphère lors du lissage, en particulier la nuit). Surestimation de FORLI des valeurs élevées de CO dans la basse troposphère le jour.

Biais positif de FORLI de 1.6% (basse troposphère) par rapport aux données MOZAIC à Windhoek. (La ville se situe en altitude, au-dessus de l'altitude où FORLI surestime dans le cas de Francfort. De plus, la couche limite y est généralement propre).

FORLI surestime les fortes valeurs lors des feux de 10% à Windhoek.

Dans la haute troposphère, les biais sont de 0.9% à Francfort et de 10% à Windhoek (biais non expliqués).

Conclusion: Quand le contraste thermique est faible, IASI n'est pas sensible à la pollution de la couche limite. A Francfort, FORLI surestime les fortes concentrations le jour, dans la basse troposphère.

4.2.3.3 *Validation avec des mesures sol du réseau NDACC*

Validation of IASI FORLI carbon monoxide retrievals using FTIR data from NDACC

Kerzenmacher, T., Dils, B., Kumps, N., Blumenstock, T., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Demoulin, P., García, O., George, M., Griffith, D. W. T., Hase, F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Jones, N., Mahieu, E., Notholt, J., Paton-Walsh, C., Raffalski, U., Ridder, T., Schneider, M., Servais, C., and De Mazière, M., *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2751-2761, doi:10.5194/amt-5-2751-2012, 2012.

Données: Les colonnes totales FORLI-CO de 2008 sont comparées aux colonnes totales mesurées par six stations sol du réseau NDACC : Ny-Alesund, Kiruna, Bremen, Jungfraujoch, Izana et Wollongong. Les colonnes totales des stations sol sont calculées à partir de profils coupés à l'altitude de la surface qui définit la colonne totale de FORLI.

Critères de colocalisation : 100 km, même jour.

Résultats : Les différences moyennes des colonnes totales varient entre -4.5% pour Wollongong et 10.8% pour Bremen (Izana : -2.4% ; Ny-Alesund : -1.5% ; Kiruna : 1.3% ; Jungfraujoch : 2.3%) mais ces moyennes ne sont pas significatives car les différences sont moins importantes que les écarts types associés.

Conclusion : En moyenne, les colonnes totales IASI et les colonnes totales sol colocalisées se comparent bien. Il n'y a pas de biais significatifs pour les valeurs moyennes des colonnes totales, et ce pour toutes les stations. Une analyse complète des erreurs au-dessus de la station de Kiruna a été menée : il est possible que les erreurs associées à la mesure et l'inversion de IASI soient sous-estimées.

Table 4.3 - Résultats de différents exercices de validation de FORLI-CO.

Chap. 4 Le CO mesuré par la mission IASI

	Sol	Avion		Satellite		
	NDACC	POLARCAT	MOZAIC	MOPITT	AIRS	TES
Période	2008	Printemps et été 2008	2008-2009	Août et novembre 2008, février 2009		
Publication	Kerzenmacher et al., 2012	Pommier et al., 2010	De Wachter et al., 2012	George et al., 2009		
CO IASI Colonnes totales	Différences moyennes (IASI-FTIR): Wollongong : -4.5% Izana : -2.4% Ny-Alesund : -1.5% Kiruna : 1.3% Jungfraujoch : 2.3% Bremen : 10.8%	Différences (IASI- <i>in situ</i>) entre 1 et 5% en été, jusqu'à 12% en été 0.15<r<0.74 au printemps 0.26<r<0.84 en été r=0.73, sur la mer au printemps r=0.69, sur la terre en été		Global : r=0.87 IASI<MOPITT (9.6%) 45°-90°N: IASI<MOPITT (11.4%) -15°,15°N : r=0.9 IASI~MOPITT (1.1%) Cas des feux : IASI~MOPITT (3%, feux Afrique 200808)	Global: r=0.92 IASI<AIRS (6.1%) -15°,15°N : r=0.95 -45°,-15°N : IASI<AIRS (13.5%) Cas des feux : IASI>AIRS (jusqu'à 17%, feux Afrique 200808)	Global: r=0.84 IASI>TES (6.2%) 45°-90°N: IASI>TES (8.5%) -15°,15°N : r=0.84 IASI>TES (8.3%)
Colonnes partielles		Colonnes 0-5km : 0.47<r<0.77 au printemps, 0.66<r<0.88 en été r=0.78, sur la mer au printemps r=0.81, sur la terre en été	Colonnes Surface-480 hPa : r~0.8 Francfort : FORLI>MOZAIC (13%) Windhoek : FORLI>MOZAIC (1.6%) Colonnes 480-225 hPa: r~0.7 Francfort : FORLI>MOZAIC (0.9%) Windhoek : FORLI>MOZAIC (10%)			
Profils		Différences < 17% (~10 ppbv) au printemps. Jusqu'à 20% l'été (cas pollué sous 8 km)				

4.3 Etudes scientifiques utilisant des données FORLI-CO

Les données FORLI-CO générées par le LATMOS et l'ULB sont distribuées publiquement via le site internet du pôle de compétences Ether (<http://www.pole-ether.fr>). Des fichiers ascii journaliers contenant les colonnes totales et d'autres paramètres (comme la fonction de lissage correspondant à la colonne totale) y sont téléchargeables, avec un délai d'un mois après la date d'observation. Les cartes journalières (jour et nuit) représentant des colonnes totales de CO peuvent y être visualisées (Fig. 4.12).

En février 2014, 88 personnes étaient inscrites sur le site afin d'avoir accès aux données.

Dans cette partie, nous présenterons un exemple d'application opérationnelle ainsi que différentes études où les données FORLI-CO sont utilisées. Pour les études qui ont fait l'objet de publications, nous nous attacherons à commenter une figure de la publication en résumant l'étude et ses résultats (les légendes de ces figures ont été traduites et adaptées). En tant que co-auteur de ces publications, j'ai été chargée de fournir les données FORLI-CO et d'apporter une expertise sur les produits.

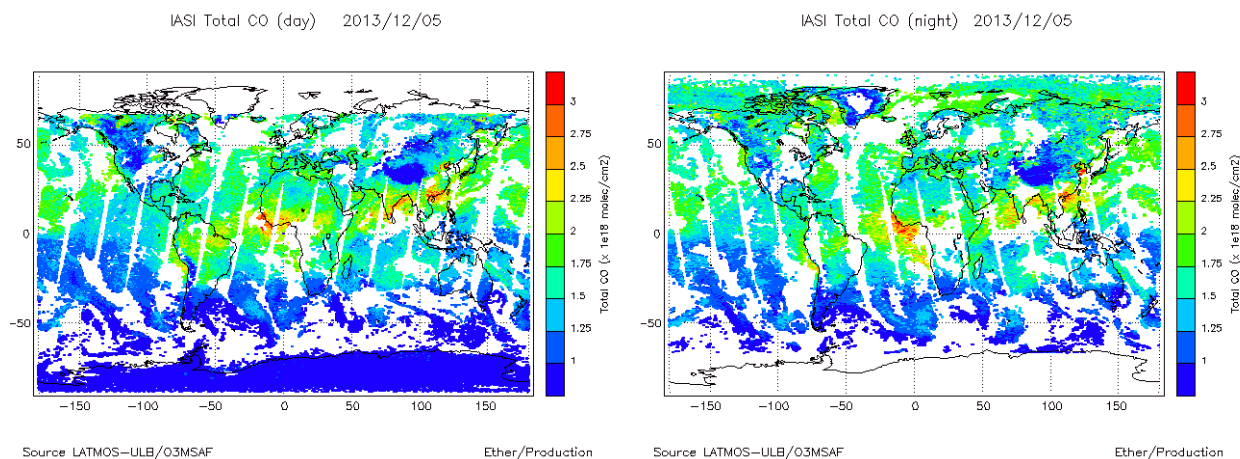


Fig. 4.12 - Exemple de cartes disponibles sur le site Ether, ici pour IASI à bord de MetOp-A, le 5 décembre 2013, pour les données jour à gauche et pour les données nuit à droite.

4.3.1 Prévision de pollution

Le LATMOS génère systématiquement des mesures IASI-CO dans le cadre du projet MACC²³ (MACC-II depuis 2013), projet qui fait partie de la composante Atmosphère du service Copernicus. Copernicus est un grand programme de l'Union Européenne dans le domaine de l'observation et de la surveillance de la Terre. Son précédent nom était Global Monitoring for Environment and Security (GMES). Il a été rebaptisé Copernicus en décembre 2012 par la Commission européenne, pour faire le pendant de l'autre grand programme Galileo, dans le domaine de la navigation par satellite. Il développe des services s'appuyant sur des observations spatiales et *in situ* dont les produits sont mis à disposition de façon complète, libre et ouverte à tous (au moins en Europe), sauf en cas de problèmes de sécurité. Ces services concernent :

- l'océan (océanographie opérationnelle : analyse et prévision de l'état physique de l'océan, observation de la couleur de l'eau (phytoplancton), au niveau global et sur les mers limitrophes européennes) ;
- l'atmosphère (analyse et prévision de la composition chimique pour la qualité de l'air et les gaz à effet de serre, au niveau global et régional sur l'Europe) ;
- les territoires (suivi de l'occupation des sols en Europe et de variables biogeophysiques sur les surfaces continentales) ;
- l'aide à la gestion des urgences (cartographie rapide de dégâts en cas de catastrophes naturelles ou technologiques, contributions à la prévision de certains risques (inondations)) ;
- le changement climatique (suivi du climat : réanalyses de conditions passées pour l'atmosphère et l'océan, suivi de variables climatiques essentielles, développement d'indicateurs pour les services climatiques) ;
- la sécurité (sécurité maritime, surveillance d'activités illégales ou de zones sensibles sur mer ou sur terre, dont les frontières).

Depuis le début de l'année 2009, le LATMOS a mis en place une chaîne de traitement des données IASI (L1c + L2) en quasi-temps réel (2.5-3 heures après l'observation) afin de fournir des données FORLI-CO à ECMWF²⁴ (Innes et al., 2013). ECMWF récupère les

²³ Monitoring Atmospheric Composition and Climate

²⁴ European Centre for Medium-Range Weather Forecasts

observations toutes les 30 minutes (via FTP) et les assimile (avec des données MOPITT et des données *in situ*) dans ses modèles, et génère des cartes de prévision de CO à différentes altitudes (Fig. 4.13). Les prévisions sont disponibles pour les 4 jours suivants, toutes les 6 heures (http://www.gmes-atmosphere.eu/d/services/gac/nrt/nrt_fields). Sur la Fig. 4.14, on peut voir les distributions globales de CO pour le mois d'août 2012, modélisées avec et sans assimilation des données satellitaires IASI et MOPITT. L'assimilation de ces données entraîne une augmentation des concentrations dans l'hémisphère nord, même si les niveaux des données satellite ne sont pas atteints. En Asie, les fortes valeurs dues aux industries se voient également augmenter.

MACC effectue en outre un suivi quotidien des feux : http://www.gmes-atmosphere.eu/d/services/gac/nrt/fire_radiative_power.

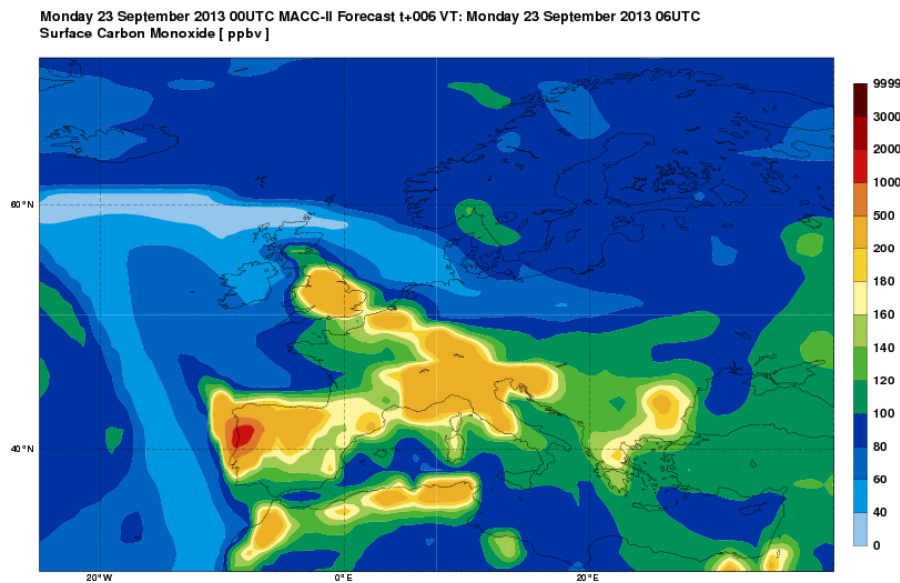


Fig. 4.13 - Exemple de prévision de pollution au monoxyde de carbone à la surface, au-dessus de l'Europe pour le lundi 23 septembre 2013 à 00:00 UTC. Figure extraite de http://www.gmes-atmosphere.eu/d/services/gac/nrt/nrt_fields.

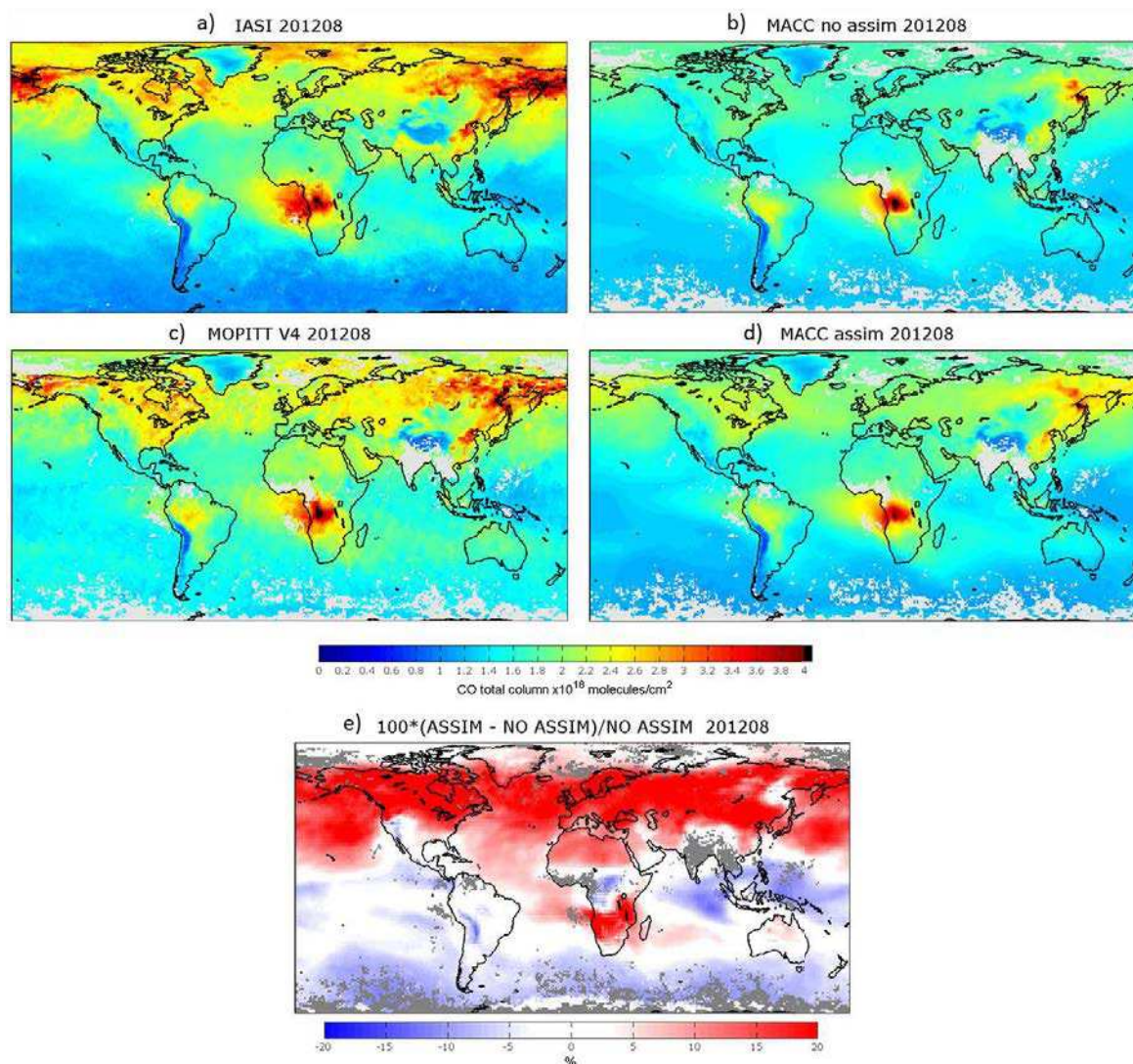


Fig. 4.14 - Distributions globales de colonnes totales de CO pour août 2012, observées par IASI (a) et MOPITT (c), modélisées par ECMWF sans assimilation (b) et avec assimilation des données IASI et MOPITT (d). Les différences entre les distributions avec et sans assimilation (d-b) sont représentées sur la carte (e) (Crédits I. Bouarar et l'équipe MACC).

4.3.2 Amélioration des simulations de modèle

On the wintertime low bias of Northern Hemisphere carbon monoxide in global model studies

Stein, O., Schultz, M. G., Bouarar, I., Clark, H., Huijnen, V., Gaudel, A., George, M., and Clerbaux, C., Atmos. Chem. Phys. Discuss., 14, 245-301, doi:10.5194/acpd-14-245-2014, 2014.

Partant du constat que les modèles globaux sous-estiment les concentrations de CO dans l'hémisphère nord (Shindell et al., 2006; Elguindi et al., 2010; Huijnen et al., 2010; Fisher et al., 2010 et Williams et al., 2013), et ce malgré l'assimilation des données satellite, Stein et al. (2014) ont effectué une série de simulations du modèle MOZART pour l'année 2008, en jouant sur les sources et les puits de CO à la surface. Les sorties du modèle ont été évaluées grâce à des moyennes mensuelles d'observations de stations sol, des colonnes totales d'instruments satellite (MOPITT/Terra et IASI/MetOp-A) ainsi que les profils du réseau MOZAIC.

Les simulations MOZART lissées par les fonctions de lissage MOPITT, les observations MOPITT (produit combiné NIR et TIR v5) et les observations IASI sont présentées sur la Fig. 4.15, la colonne de gauche pour janvier 2008 et la colonne de droite pour juillet 2008. Les deux premières lignes sont directement comparables car les sorties du modèle sont lissées avec les fonctions de lissage de MOPITT. Les produits IASI sont présentés à titre indicatif. On constate que les produits MOPITT et IASI sont en bon accord pour la plupart des régions, les colonnes totales de MOPITT étant cependant légèrement plus élevées que celles de IASI pour quelques régions de l'hémisphère nord en janvier. Les simulations MOZART sont capables de reproduire la répartition de concentrations de CO sur le globe mais calculent des colonnes plus élevées au-dessus de l'Inde et légèrement moins élevées au-dessus des régions polluées comme l'Europe, l'Amérique du nord et à l'est de l'Asie. Concernant les régions d'Afrique où les feux de biomasse ont lieu, les simulations montrent des concentrations de CO moins élevées que celles des satellites en janvier alors que celles-ci sont surestimées en juillet.

Le biais négatif entre les simulations du modèle et les observations satellite est connu dans l'hémisphère nord en hiver et au printemps et peut être expliqué soit par le manque de certaines sources d'émission, soit par une surestimation du puits du dépôt sec à la surface. L'étude de Stein et al. (2014) montre que la simulation la plus satisfaisante (i.e. qui montre le meilleur accord avec les données sol) modifie les paramètres du dépôt sec et prend en compte des variations saisonnières du CO émis par le trafic routier en Europe et en Amérique du nord.

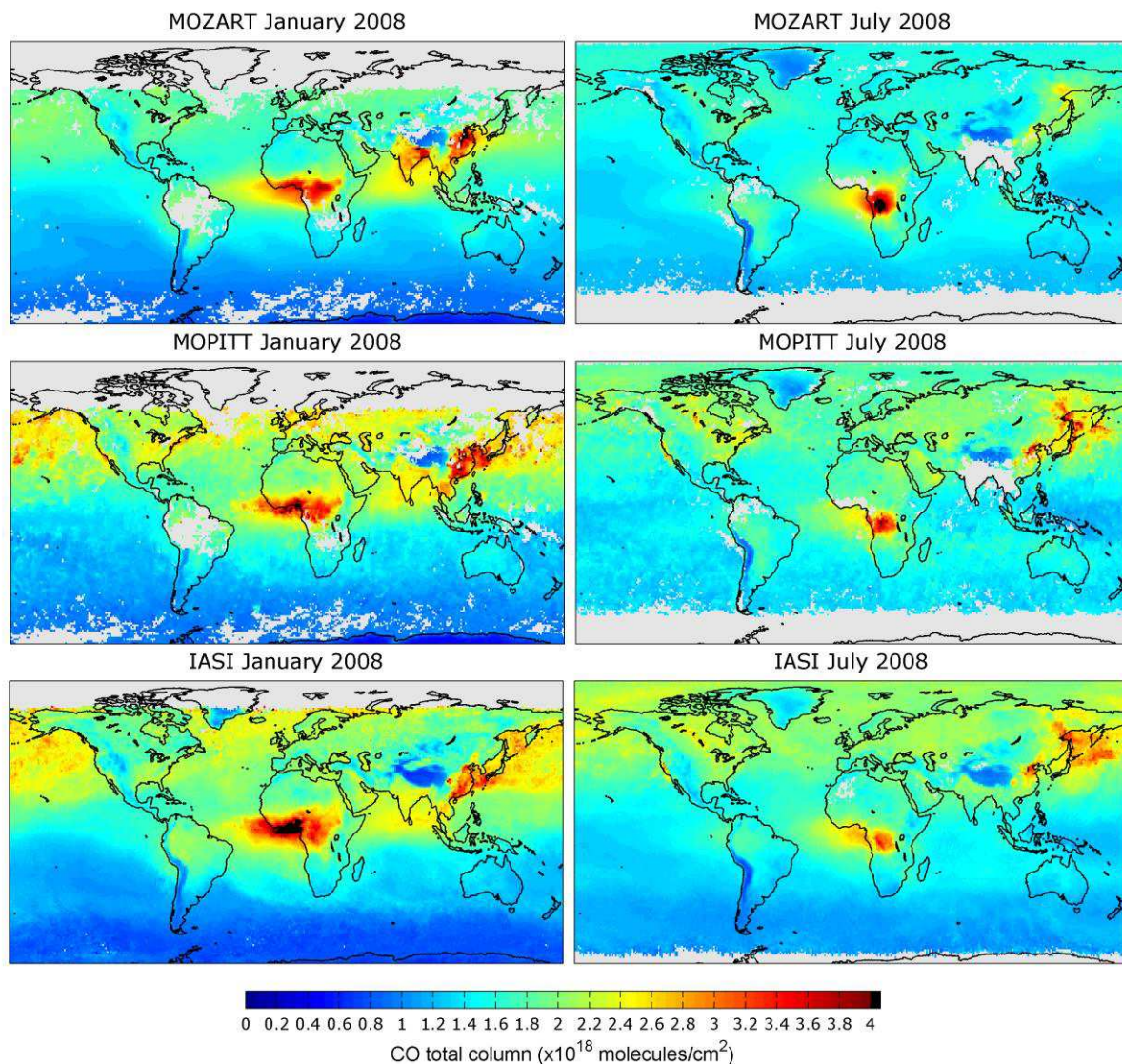


Fig. 4.15 – Moyennes mensuelles des colonnes totales de CO simulées par le modèle MOZART et lissées par les fonctions de lissage de MOPITT (en haut) et observées par MOPITT (au milieu) et IASI (en bas), pour janvier (colonne de gauche) et juillet 2008 (colonne de droite) (Figure 6 de Stein et al. (2014)).

4.3.3 Feux en Russie en 2010

Satellite- and ground-based CO total column observations over 2010 Russian fires: accuracy of top-down estimates based on thermal IR satellite data

Yurganov, L. N., Rakitin, V., Dzhola, A., August, T., Fokeeva, E., George, M., Gorchakov, G., Grechko, E., Hannon, S., Karpov, A., Ott, L., Semutnikova, E., Shumsky, R., and Strow, L., Atmos. Chem. Phys., 11, 7925-7942, doi:10.5194/acp-11-7925-2011, 2011.

Les données de trois sondeurs satellitaires ainsi que celles de deux instruments sol situés à Moscou et dans sa banlieue sont utilisées afin d'estimer les émissions de CO pendant les feux qui ont eu lieu en Russie en juillet-août 2010. Les feux de forêt et de tourbière se sont déclenchés à l'est et au sud-est de Moscou et ont affecté la qualité de l'air de la ville. L'étude montre que les valeurs de la colonne totale de CO inversées à partir des observations des sondeurs satellitaires (AIRS, MOPITT et IASI) sont jusqu'à 2-3 fois inférieures aux mesures sol. La différence moyenne entre les colonnes totales mesurées au sol et celles inversées à partir des observations satellitaires varie entre 1.6 et 3.3×10^{18} molécules/cm². La quantité totale de CO émise pendant ces feux est estimée entre 34 et 40 ± 12 Tg par un modèle qui inclut cette correction des mesures satellitaires (qui sont augmentées de 40-100%).

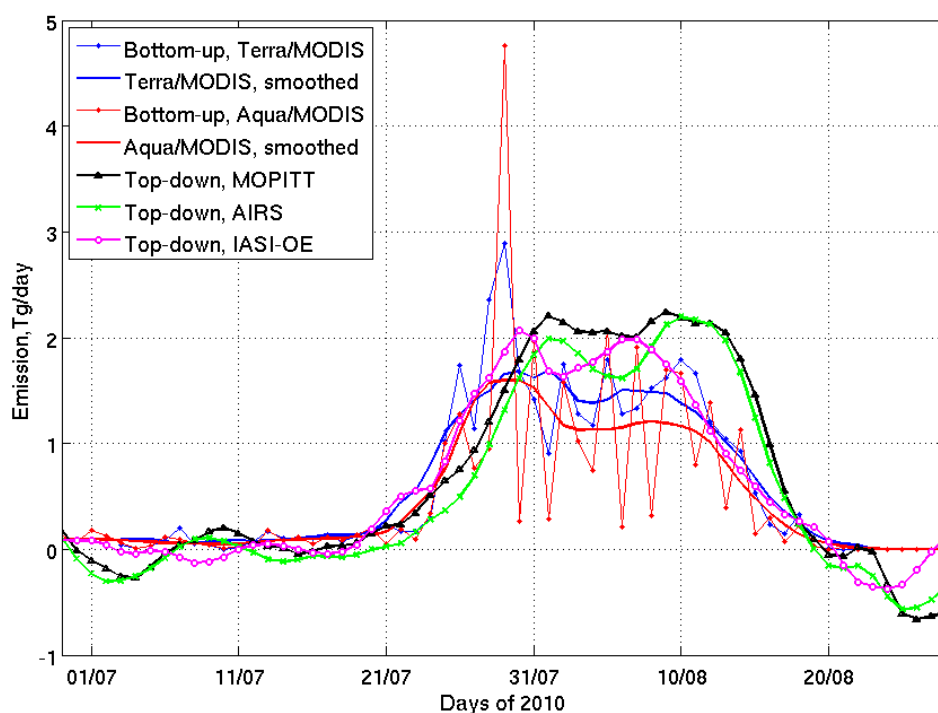


Fig. 4.16 - Comparaison des estimations « top-down » (MOPITT, AIRS et IASI) et « bottom-up » (MODIS/Terra et MODIS/Aqua) des émissions journalières de CO pour la période juillet-août 2010 (Figure 15 de Yurganov et al. (2011)).

Sur la Fig. 4.16, on peut voir les estimations (Tg/jour) des émissions de CO pour MOPITT, AIRS et IASI qui utilisent des méthodes top-down, corrigées. Ces émissions sont comparées avec les estimations de Fokeeva et al. (2011) basées notamment sur les inventaires de surfaces brûlées de MODIS/Terra et MODIS/Aqua. Ces deux estimations ont été lissées pour faciliter

la comparaison avec les graphes MOPITT, AIRS et IASI. Ainsi on peut voir que toutes les distributions des émissions estimées ont des allures similaires et présentent deux maxima.

Les estimations des émissions totales de CO (entre le 15 juillet et le 31 août 2010) sont de 39.6 Tg pour MOPITT, 35.6 Tg pour IASI et de 33.7 Tg pour AIRS. Ces estimations sont en bon accord avec celles de Fokeeva et al. (2011) qui sont de 29.8 Tg pour MODIS/Aqua et 36.1 Tg pour MODIS/Terra.

How much CO was emitted by the 2010 fires around Moscow?

Krol, M., Peters, W., Hooghiemstra, P., George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., McNerney, D., Sedano, F., Bergamaschi, P., El Hajj, M., Kaiser, J. W., Fisher, D., Yershov, V., and Muller, J.-P., Atmos. Chem. Phys., 13, 4737-4747, doi:10.5194/acp-13-4737-2013, 2013.

Une autre méthode d'estimation des émissions de CO pendant les feux en Russie en 2010 est présentée ici. Dans cette étude, les données FORLI-CO de IASI sont assimilées dans le modèle TM5-4DVAR qui évalue les émissions de CO à environ 24 Tg pour la période des feux (entre le 16 juillet et le 17 août 2010). C'est moins que dans d'autres études (comme celle de Yurganov et al. (2011) présentée ci-dessus) mais plus qu'avec certaines méthodes « bottom-up » (Konovalov et al., 2011).

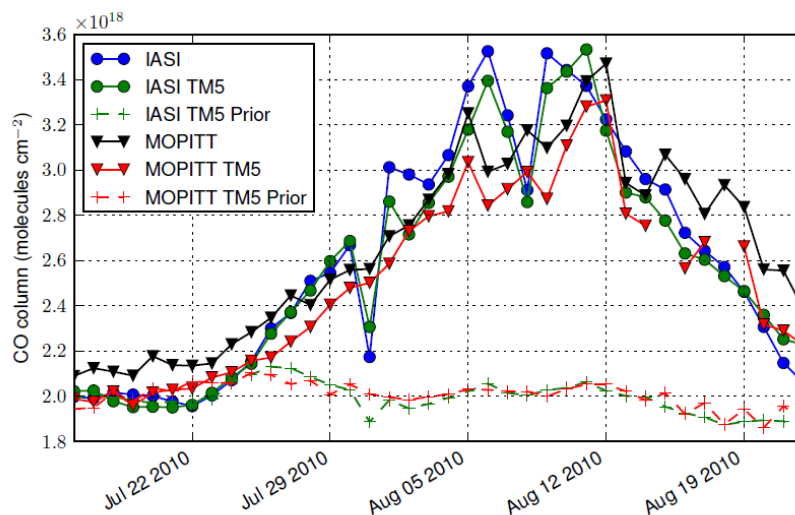


Fig. 4.17 - Colonnes totales journalières de CO pour la région (45°-70°N ; 30°-70°E), entre le 16 juillet et le 22 août 2010. Les observations IASI et MOPITT (V4) sont représentées respectivement en bleu et en noir. Les simulations du modèle TM5 colocalisées avec IASI sont représentées en vert (avec les estimations optimisées avec IASI en trait plein et sans IASI en trait pointillé). Même chose en rouge pour les simulations TM5 colocalisées avec

MOPITT. Très peu de données IASI les 31/07 et 8/08 en raison d'une intrusion lunaire et d'une calibration externe respectivement (Figure 2 de Krol et al. (2013)).

Sur la Fig. 4.17 on peut voir les colonnes totales de CO moyennées par jour pour une région de 25° x 40° autour de Moscou. L'accord entre les observations IASI (bleu) et les simulations du modèle avec les estimations optimisées avec IASI (trait plein vert) est excellent comparé aux simulations sans IASI (trait pointillé vert).

4.3.4 Tendances

Decadal record of satellite carbon monoxide observations

Worden, H. M., Deeter, M. N., Frankenberg, C., George, M., Nichitiu, F., Worden, J., Aben, I., Bowman, K. W., Clerbaux, C., Coheur, P. F., de Laat, A. T. J., Detweiler, R., Drummond, J. R., Edwards, D. P., Gille, J. C., Hurtmans, D., Luo, M., Martínez-Alonso, S., Massie, S., Pfister, G., and Warner, J. X., *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 837-850, doi:10.5194/acp-13-837-2013, 2013.

Dans cet article sont présentées des tendances de CO sur une période de 11 ans : de 2000 à 2011. Les mesures des instruments MOPITT, AIRS, TES et IASI, sondant tous les quatre dans l'infrarouge thermique, sont utilisées. Différentes régions sont étudiées : l'hémisphère nord, l'hémisphère sud, l'est de la Chine, l'est des Etats-Unis, l'Europe et l'Inde.

Dans l'hémisphère nord (Fig. 4.18), les colonnes totales de CO de tous les instruments diminuent de 1% environ par an, pour cette période de 11 ans. En Europe et aux Etats-Unis, cette diminution est une tendance connue : Granier et al. (2011) note une diminution des émissions anthropiques de 1% par an environ (de 1990 à 2010), avec des diminutions plus importantes au-dessus de l'Europe et des Etats-Unis (3% par an environ). Mais pour la Chine, c'est la première fois qu'une diminution est publiée ($1.6 \pm 0.5\%/an$). Une diminution (moins significative) est également relevée dans l'hémisphère sud.

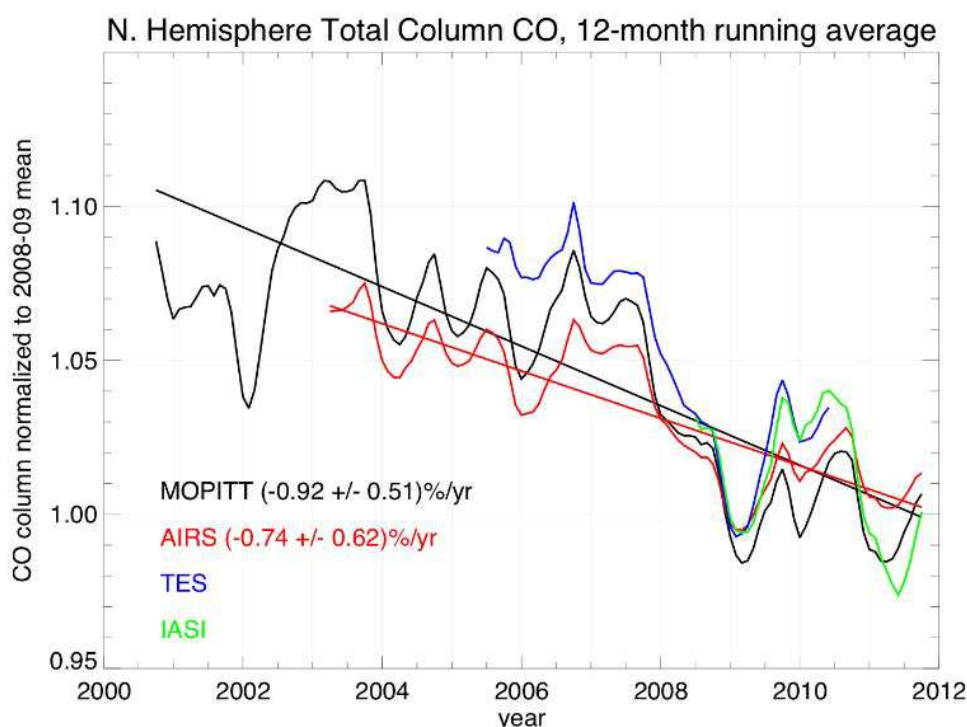


Fig. 4.18 - Moyennes glissantes sur 12 mois des colonnes totales de CO normalisées par la moyenne de la période 08/2008-07/2009, vues par MOPITT, AIRS, TES et IASI (Figure 6 de Worden et al. (2013)).

4.3.5 Estimations d'émissions de CO

On the capability of IASI measurements to inform about CO surface emissions

Fortems-Cheiney, A., Chevallier, F., Pison, I., Bousquet, P., Carouge, C., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., George, M., Hurtmans, D., et Szopa, S., *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8735–8743, 2009.

Dans cet article les données de CO IASI et MOPITT sont assimilées dans un modèle afin d'estimer les émissions de CO à l'échelle du globe. Tout d'abord, les concentrations de CO à 700 hPa restituées à partir des sondeurs IASI et MOPITT sont comparées, pour une période de 5 mois, de juillet à novembre 2008. Ensuite, chacun des deux jeux de données est utilisé dans le modèle afin de simuler deux inventaires d'émissions. Ainsi, pour un bilan global initial²⁵ de 479 Tg, l'assimilation des données IASI va conduire à un bilan global estimé de 643 Tg et MOPITT à un bilan de 649 Tg. Fournissant des données depuis 2000, MOPITT est

²⁵ Basé sur les inventaires : Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR3) et Global Fire and Emission database (GFED-v2)

couramment utilisé dans les modèles. Dans ce papier, Fortems-Cheiney et al. montrent que IASI peut jouer un rôle majeur dans la quantification des émissions de CO.

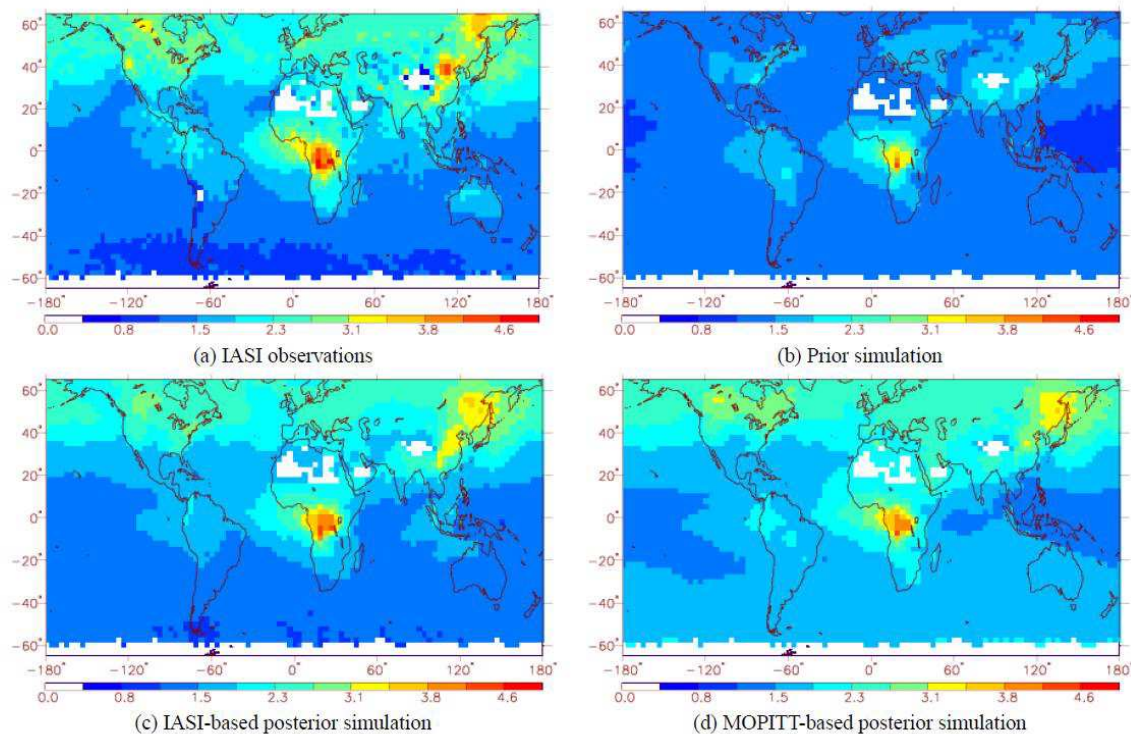


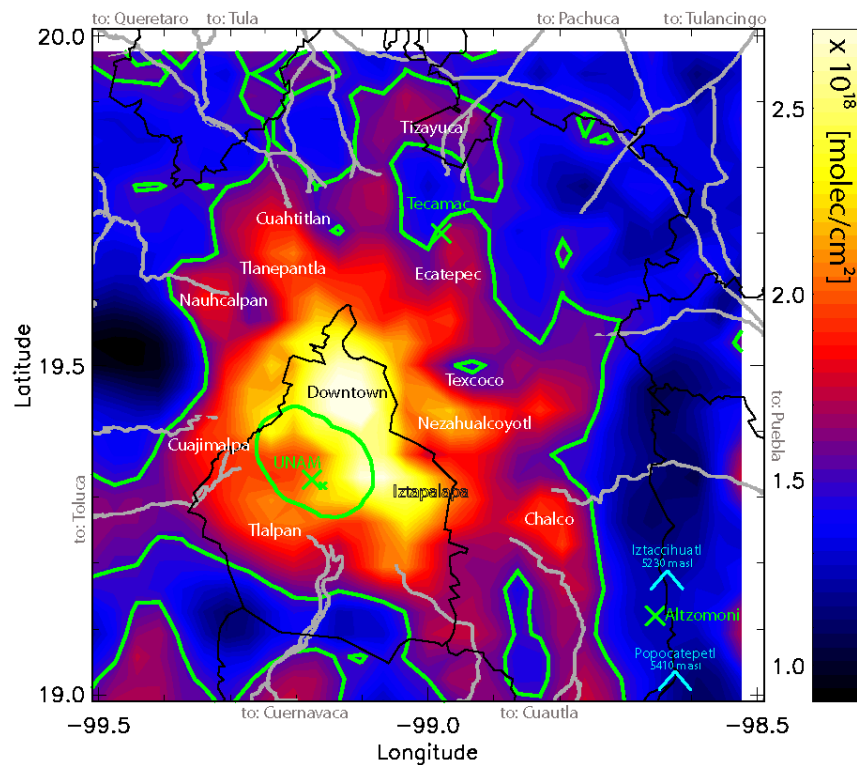
Fig. 4.19 - Colonnes partielles moyennes (en 10^{17} molécules/cm²) pour juillet 2008 : observations IASI pour la couche la plus proche de 700 hPa (a), colonnes partielles *a priori* du modèle (b), sorties du modèle après assimilation des données IASI (c) et pour comparaison, les sorties du modèle après assimilation des données MOPITT, lissées par les fonctions de lissage IASI (d) (Figure 5 de Fortems-Cheiney et al. (2009)).

Sur la Fig. 4.19, on note que les simulations *a priori* (b) de l'hémisphère sud sont en bon accord avec les observations de IASI (a). En revanche, les différences dans l'hémisphère nord sont de l'ordre de 60% (les données *a priori* étant plus faibles que celles de IASI) et peuvent atteindre 120% dans l'est de l'Asie. Dans les simulations utilisant les données IASI, on voit l'apparition de fortes concentrations dans l'hémisphère nord, comme on l'attend, même si celles-ci ne sont pas aussi élevées que les observations IASI. En comparant les Fig. 4.19(c) et Fig. 4.19(d), on peut voir que les colonnes estimées par le modèle après assimilation des données IASI sont plus basses que celles estimées après assimilation des données MOPITT dans l'hémisphère sud. En revanche, celles-ci sont plus élevées pour les fortes concentrations en Afrique et en Asie, et similaires ailleurs.

Top-down estimation of carbon monoxide emissions from the Mexico Megacity based on FTIR measurements from ground and space

Stremme, W., Grutter, M., Rivera, C., Bezanilla, A., Garcia, A. R., Ortega, I., George, M., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Hannigan, J. W., and Coffey, M. T., *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 1357-1376, doi:10.5194/acp-13-1357-2013, 2013.

Dans cet article, Stremme et al. estiment les émissions annuelles de CO de la mégapole de Mexico, grâce à une méthode « top-down » faisant appel aux données de IASI ainsi qu'à des mesures sol d'un interféromètre basé à l'Université de Mexico. Les données IASI sont utilisées pour reconstruire la distribution spatiale du CO. Les émissions annuelles de la mégapole sont estimées à 2.15 ± 0.5 Tg/an pour l'année 2008, alors que l'estimation de l'inventaire officiel mexicain est de 1.6 Tg/an.



Sur la Fig. 4.20 sont présentées les colonnes totales de CO IASI moyennées entre octobre 2007 et décembre 2010 (donnés jour, correspondant à l'orbite du matin). Le large contour vert indique le niveau de CO de 1.51×10^{18} molécules/cm² (entre les couleurs bleues et violettes), et définit les limites de la mégacité de Mexico : 5177 km².

4.3.6 Prévion de plans de vol pour des campagnes de mesures

La campagne ACCESS a eu lieu au nord de la Norvège en juillet 2012 avec pour objectif d'étudier les polluants qui affectent l'atmosphère arctique. Grâce à des mesures avion, les sources locales dues aux émissions des bateaux et des plate-formes pétrolières ont été étudiées, tout en prenant en compte les émissions d'autres sources, comme les usines de la péninsule russe Kola ou les feux de forêt en Sibérie. Les premiers résultats de cette campagne sont exposés dans l'article :

Quantifying emerging local anthropogenic emissions in the Arctic region: the ACCESS aircraft campaign experiment

Roiger, A., Thomas, J.-L., Schlager, H., Law, K., Kim, J., Schäfler, A., Marelle, L., Raut, J.-C., Weinzierl, B., Reiter, A., Rose, M., Dahlkötter, F., Minikin, A., Krisch, I., Scheibe, M., Stock, P., Baumann, R., Bouarar, I., Clerbeaux, C., George, M., Onishi, T., Flemming, J., Bulletin of American Meteorological Society, soumis (2014).

Pendant la campagne, des chercheurs allemands et français ont étudié les cartes de CO IASI disponibles sur le site internet du pôle de compétences Ether (<http://www.pole-ether.fr>) (Fig. 4.12) afin de surveiller l'évolution des panaches de CO dus aux feux en Sibérie. En combinant ces informations avec les prévisions MACC (qui assimilent les données IASI et MOPITT, cf. section 4.3.1) du 17 juillet 2012, le plan de vol du Falcon-20 a pu être établi afin qu'un panache venant de Sibérie puisse être sondé. Sur la Fig. 4.21, on peut voir l'évolution du panache en question (indiqué par les flèches) entre le 13 et le 18 juillet 2012 sur les données de colonnes totales de CO fournies par les observations IASI.

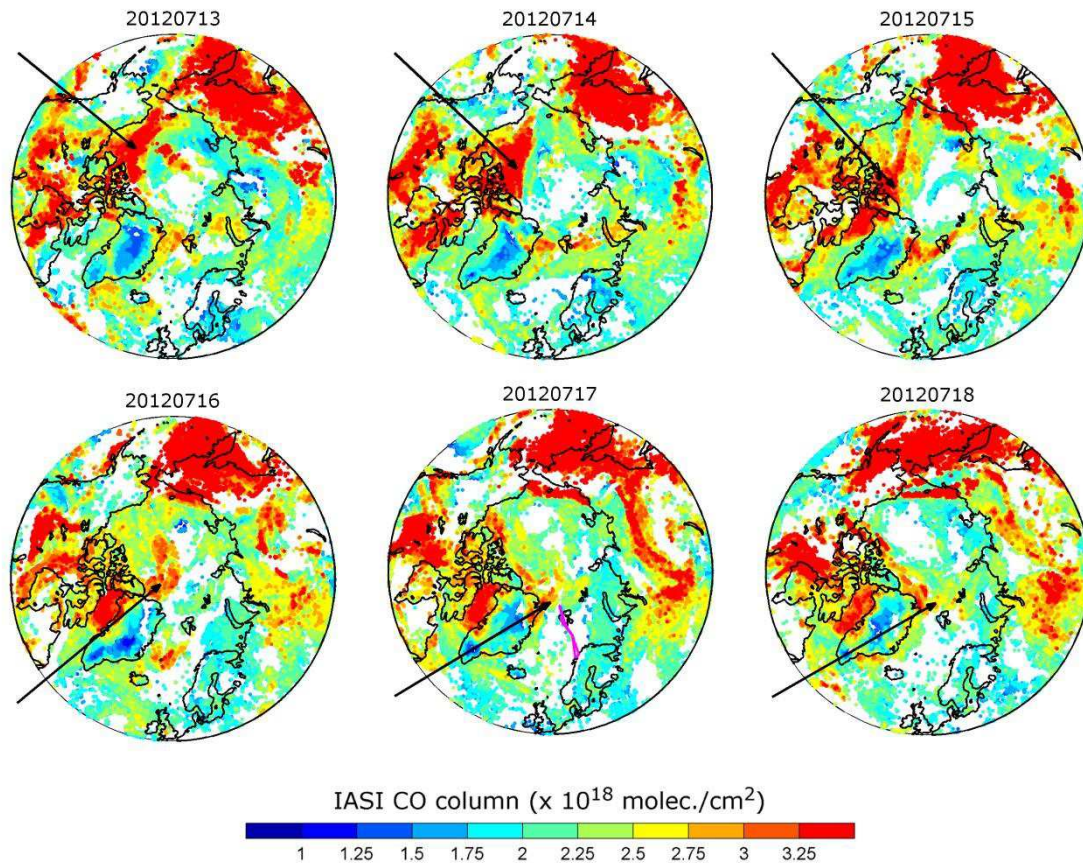


Fig. 4.21 – Colonnes totales de CO du 13 au 18 juillet 2012 qui montrent les fortes concentrations dues aux feux de Sibérie. Un large panache de CO originaire de Sibérie est visible au large du Canada par IASI le 13 juillet. Ce panache est ensuite transporté au fil des jours dans la direction de Spitsbergen. Une extrémité de ce panache est mesurée lors du vol du Falcon-20 le 17 juillet (le trajet effectué est tracé en magenta). Les pixels nuageux (i.e. sans données) sont représentés en blanc (Figure 10 de Roiger et al. (2014))

Chapitre 5: MOPITT/IASI : comparaison et étude de l'influence de l'*a priori* dans le processus d'inversion

5.1 Introduction

Les données CO des instruments IASI et MOPITT, deux instruments qui sondent l'atmosphère dans l'infrarouge thermique, sont largement utilisées par la communauté, et ce pour différents types d'études (cf. section 4.2.3). MOPITT qui vole à bord du satellite Terra fournit des données de CO depuis mars 2000, et est encore actif à ce jour. IASI, à bord de MetOp-A, fournit des données de CO puis octobre 2007 et depuis mars 2012 à bord de MetOp-B. Avec un 3^{ème} instrument dont le lancement est prévu en 2018 à bord de MetOp-C, IASI promet un jeu de données sur une quinzaine d'année au moins. Afin de disposer d'un jeu de données cohérent sur le long terme, il faut vérifier que les produits de ces deux instruments sont homogènes et cohérents. Il est donc important de connaître les différences entre les produits CO de chacun, de quantifier et d'expliquer ces différences. Le jour où MOPITT cessera de fonctionner, IASI doit pouvoir se positionner comme son successeur.

Dans ce chapitre nous allons comparer les produits CO IASI et MOPITT et étudier l'influence du choix des hypothèses *a priori* dans le processus d'inversion. Rappelons que les algorithmes d'inversion de IASI et MOPITT reposent sur le principe de l'estimation optimale (Rodgers, 2000) résumée dans la section 2.2.3. Le problème inverse qui consiste à estimer un profil de concentration à partir d'un spectre est contraint par des hypothèses *a priori*. L'algorithme d'inversion des mesures IASI, FORLI, utilise un profil de CO et une matrice de variance-covariance *a priori* fixes. Les produits CO MOPITT v5T sont issus d'un processus d'inversion qui utilise un profil de CO et une matrice de variance-covariance *a priori* qui varient selon la localisation et la période de l'année. Notons que des hypothèses *a priori* fixes étaient utilisées jusqu'à la version 3 des produits MOPITT et l'équipe du NCAR chargée de l'inversion a décidé en 2010, pour la version 4, de choisir des hypothèses *a priori* variables afin d'améliorer la restitution des profils en évitant notamment que l'information restituée pour une couche atmosphérique ne soit « redistribuée » vers d'autres couches (Deeter et al.,

2010). Cela est notamment possible grâce à un profil *a priori* variable et une matrice de variance-covariance *a priori* qui laisse peu de corrélation entre les couches lors du processus d'inversion, nous verrons cela en détail plus loin.

Nous allons tout d'abord comparer directement les colonnes totales de CO de IASI et MOPITT. Ensuite, nous exposerons la méthodologie de l'expérience que nous avons menée pour analyser l'influence de l'a priori dans le processus d'inversion. Nous présenterons les résultats, pour des colonnes totales et des profils de CO. La dernière section présentera les conclusions de l'étude. Cette étude fait l'objet d'un article en préparation.

5.2 Comparaison directe des colonnes totales

5.2.1 Distributions à l'échelle globale et coupe latitudinale

Sur la Fig. 5.1 sont représentées les distributions des colonnes totales de CO IASI (v20100815) et MOPITT v5T pour le mois d'avril 2010, ainsi que la distribution des différences relatives entre les colonnes des deux instruments. Les différences relatives sont calculées en fonction des données IASI pour permettre de comparer les résultats obtenus avec les différentes versions de données MOPITT que nous présenterons dans ce chapitre.

Les moyennes mensuelles sont en bon accord pour ce mois, avec des différences relatives généralement comprises entre $\pm 10\%$. Les concentrations de CO élevées au-dessus de l'Europe, des Etats-Unis, et de l'Afrique centrale sont vues par les deux instruments avec la même intensité. Une partie des concentrations élevées au-dessus de la Chine est sous-estimée par IASI par rapport à MOPITT (20-25%). Au-dessus de la mer dans la région intertropicale les concentrations de IASI peuvent être supérieures à celles de MOPITT de 15 à 20%. C'est au-dessus des surfaces de glace que les plus fortes différences sont observées : IASI > MOPITT en Antarctique et IASI < MOPITT au Groenland.

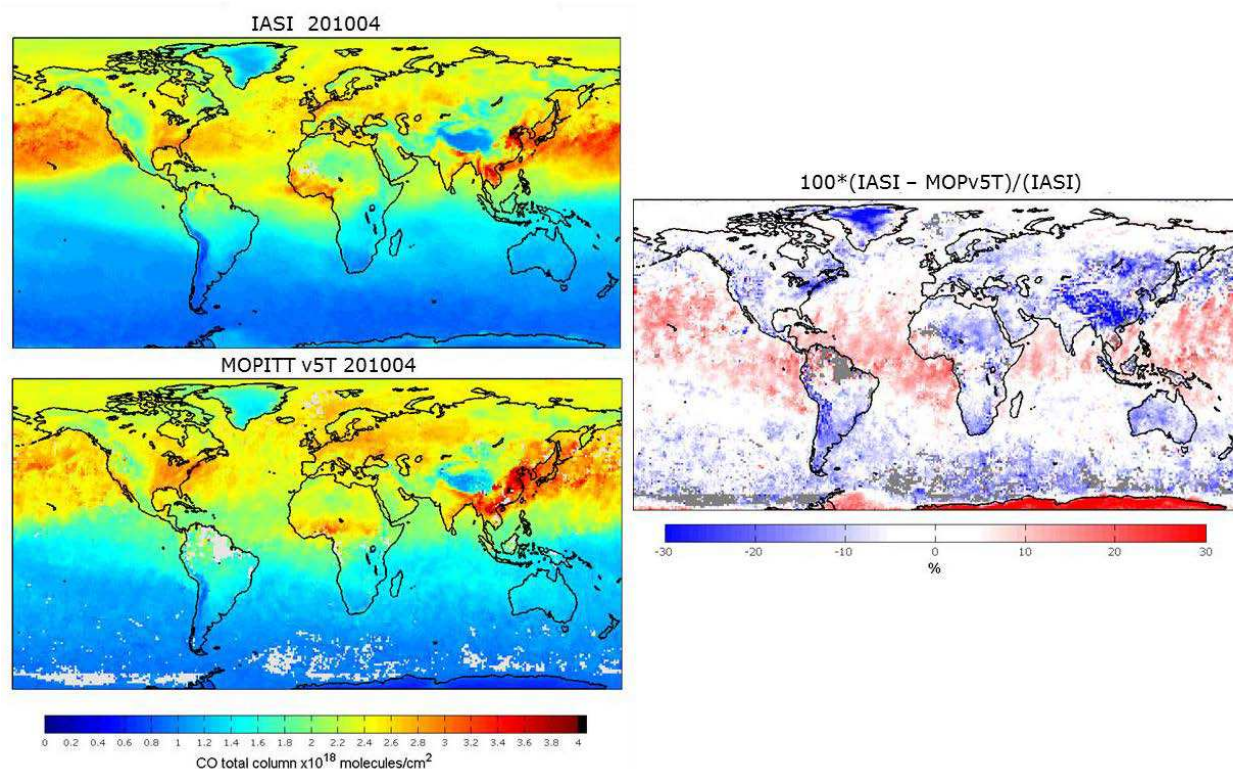


Fig. 5.1 – A gauche, distributions de colonnes totales de CO pour IASI et MOPITT (v5T), pour le mois d’avril 2010. Les données jour sont moyennées dans une grille de 1° x 1°. Les points gris clair correspondent à des régions sans données. A droite, différences relatives correspondantes $100 \cdot (IASI - MOPv5T) / IASI$. Les points gris foncé correspondent aux régions sans données pour IASI et/ou MOPITT.

Comparons les distributions en coupe latitudinale de IASI et MOPITT (Fig. 5.2 ; la description de la coupe latitudinale IASI est donnée dans la section 4.1.4). Les valeurs de CO dans l’hémisphère nord, où est située la majorité des sources, sont généralement plus élevées pour MOPITT que pour IASI, en particulier au-dessus de 60°N. Il en est de même pour les valeurs de fond de l’hémisphère sud. En revanche, les événements exceptionnels de feux sont plus marqués pour IASI que pour MOPITT, par exemple pour les feux en Russie en 2010 et en Sibérie en 2012 (section 4.3.3 et 4.3.6). Dans une moindre mesure, il en va de même pour les épisodes de feux qui ont lieu chaque année en Afrique pour le défrichage agricole en août-septembre, puis en Amazonie en septembre-octobre, où les concentrations de IASI sont légèrement plus élevées que celles de MOPITT, en particulier pour 2010, l’année où ces feux sont les plus importants par rapport aux autres années de la période étudiée (2008-2012).

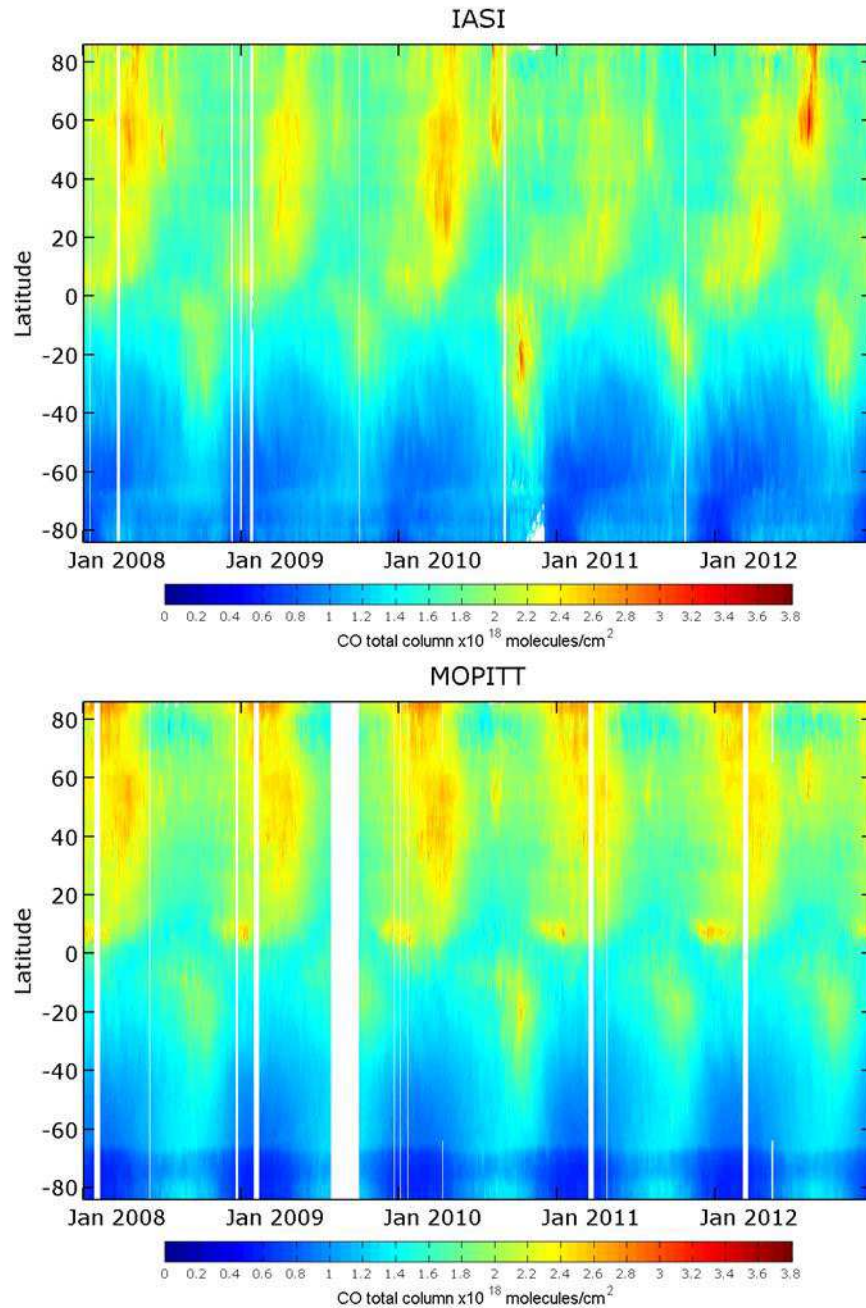


Fig. 5.2 - Coupe latitudinale des colonnes totales de CO de IASI et MOPITT (v5T) de 2008 à 2012. La coupe latitudinale de IASI est également présentée sur la Fig. 4.7. Les traits blancs correspondent aux journées sans données (pas de données MOPITT entre le 28 juillet et le 29 septembre 2009 notamment, suite à une défaillance du système de refroidissement).

5.2.2 Variabilité sur 5 ans au-dessus de douze régions

Pour comparer les colonnes totales de CO fournies par IASI et MOPITT à l'échelle locale, nous avons repris les 12 régions réparties sur le globe et utilisées dans la section 4.1.5 (qui illustre la variabilité des colonnes totales de CO de IASI). Les régions choisies sont représentées sur la Fig. 4.8, et correspondent à des situations géophysiques variées. Les latitudes et longitudes de chaque boîte sont indiquées dans la Table 4.2. Notons que les problèmes de géolocalisation de MOPITT identifiés en 2012, ont été pris en compte²⁶. Nous avons volontairement choisi des régions de petites tailles afin que les deux instruments sondent les mêmes masses d'air. Par exemple, la boîte « Europe » de 5° x 5° correspond à une boîte de 380 km x 380 km. La boîte « Mexico city » de 2° x 2° correspond à une boîte de 210 km x 210 km. Pour chaque boîte, les moyennes (sur 15 jours) des colonnes totales de CO sont calculées sur les jours où il existe des données IASI et des données MOPITT dans la boîte.

Les moyennes et les écarts types correspondants pour chaque région, sont présentés sur la Fig. 5.3, pour IASI en rouge et MOPITT v5T en bleu. Nous notons globalement un bon accord entre les deux instruments. Les cycles saisonniers (section 4.1.5) sont vus par les deux instruments, avec les mêmes amplitudes. Les différences relatives moyennées sur les 5 ans étudiés sont présentées dans Table 5.1. Les coefficients de corrélation (Table 5.1) sont les meilleurs pour les régions « Desert », « Forest », « Mexico city », « Atlantic » et « Africa » : 0.96, 0.94, 0.92, 0.91 et 0.91 respectivement.

Les colonnes totales moyennes de MOPITT sont en général systématiquement plus élevées que celle de IASI pour 6 régions (toutes dans l'hémisphère nord) : « Europe », « USA », « Teheran », « San Francisco », « Desert » et « Mexico city » (cf. colonnes totales moyennes ainsi que les biais moyens et biais absolus moyens (variant entre 8.8 et 15.6%) de la Table 5.1). Il n'y a pas de tendance claire pour les régions « Pacific », « Forest », « Africa », « China », et « Calcutta », où les biais moyens varient entre -7.5% et 4.6% avec des écarts types variant entre 8.1 et 15.7. Au-dessus de la région « Atlantic », ce sont les colonnes totales moyennes de IASI qui sont systématiquement plus élevées que celles de MOPITT. Les écarts types sont les plus élevés au-dessus de la région « China », celui correspondant aux colonnes totales moyennes de IASI étant plus élevé que celui de MOPITT.

²⁶ <http://www.acd.ucar.edu/mopitt/GeolocationBiasReport.pdf>

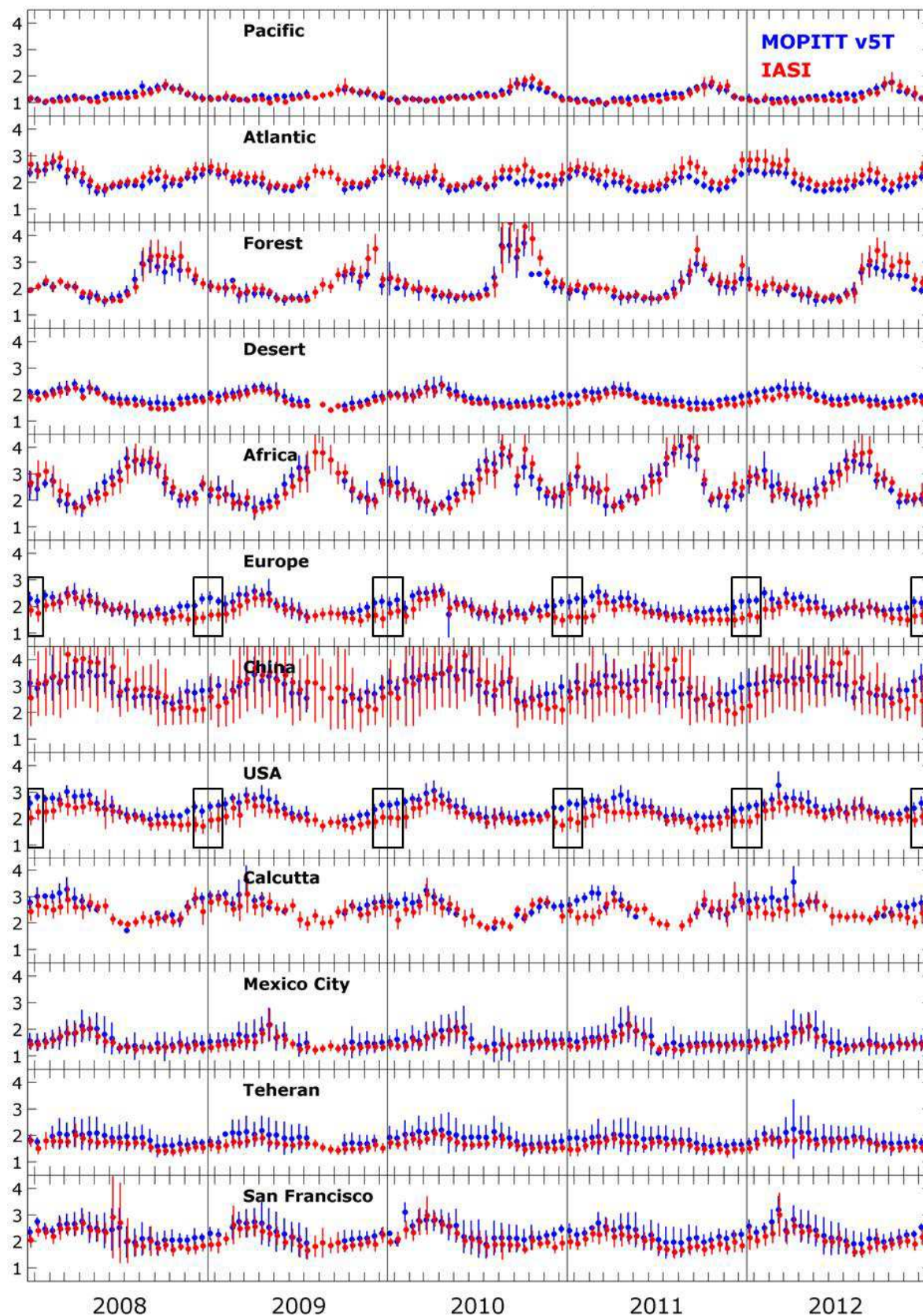


Fig. 5.3 - Variabilité des colonnes totales de CO IASI (en rouge) et MOPITT (en bleu) ($\times 10^{18}$ molécules/cm²) pour les régions présentées sur la Fig. 4.8. Chaque point représente une moyenne sur 15 jours. Les barres verticales représentent l'écart type pour la région étudiée.

Comme on peut le voir sur les coupes latitudinales, les colonnes totales de CO de MOPITT augmentent plus rapidement en hiver que celles de IASI dans l'hémisphère nord. Sur les séries temporelles de la Fig. 5.3, les différences les plus importantes sont relevées en janvier et décembre de chaque année pour les régions « Europe » et « USA » (cf. rectangles noirs sur la Fig. 5.3) : les colonnes totales de MOPITT sont en moyenne supérieures aux colonnes de IASI de 33% pour la région « Europe » et de 27.5% pour la région « USA », pour ces deux mois.

Table 5.1 - Colonnes totales moyennes de CO et écarts types correspondants sur 5 ans (2008-2012) pour IASI et MOPITT v5T, pour les 12 régions de l'étude (colonnes 2 à 5 de la table). Coefficients de corrélation (r , de Pearson)²⁷ entre les colonnes totales moyennes IASI et MOPITT (colonne 6). Différences relatives moyennes ($100 \cdot (IASI - MOPITT) / IASI$) et écarts types correspondants entre les deux instruments (colonnes 7 et 8) et moyennes des valeurs absolues des différences et écarts types correspondants (colonnes 9 et 10). Pour les régions « Europe » et « USA », les valeurs en gras correspondent aux mois de décembre et janvier (indiquées DJ). Les colonnes totales moyennes de CO IASI sont également présentées dans la Table 4.2.

Regions	IASI		MOPITT v5T		r	100*(IASI-MOPITT)/(IASI)			
	Mean CO	Mean Std	Mean CO	Mean Std		Mean bias	Mean std	Mean abs bias	Mean std
Pacific	1.2	0.1	1.3	0.1	0.89	-4.9	8.1	7.7	5.4
Atlantic	2.3	0.2	2	0.2	0.91	10.4	4.5	10.4	4.4
Forest	2.3	0.3	2.1	0.3	0.94	4.6	8.5	7.7	5.8
Desert	1.8	0.1	2	0.2	0.96	-9.9	3.9	9.9	3.9
Africa	2.6	0.4	2.6	0.4	0.91	-0.2	10	8.5	5.4
China	3	1.1	3	0.5	0.67	-2.7	15.7	12.4	9.9
Europe	1.8	0.3	2.1	0.3	0.67	-14.9 -33 DJ	12.7 7.9 DJ	15.6 33 DJ	11.8 7.9 DJ
Mexico city	1.5	0.2	1.6	0.4	0.92	-8.3	6.3	8.8	5.6
Teheran	1.7	0.2	1.9	0.4	0.87	-12.9	5	12.9	5
San Francisco	2.1	0.3	2.3	0.4	0.88	-11.2	7.7	11.9	6.6
Calcutta	2.4	0.3	2.7	0.2	0.52	-7.5	12.1	11.4	8.5
USA	2.1	0.3	2.4	0.3	0.8	-15.1 -27.5 DJ	8.9 5.4 DJ	15.1 27.5 DJ	8.9 5.4 DJ

²⁷ $r(i, j) = \frac{Cov(i, j)}{\sqrt{Cov(i, i)Cov(j, j)}}$ avec Cov la covariance.

Les produits CO MOPITT et IASI diffèrent car :

- ce sont des instruments différents basés sur des techniques de mesures différentes (spectromètre à corrélation de gaz/spectromètre à transformation de Fourier, les canaux spectraux utilisés ne sont pas les mêmes) et avec des sensibilités proches (dans la moyenne troposphère) mais pas égales (Fig. 5.4) ;
- les observations ne sont pas faites à la même heure car les heures de passage à l'équateur sont différentes : 9h30 pour IASI et 10h30 pour MOPITT ;
- les données de température, d'humidité ou encore d'émissivité utilisées dans les processus d'inversion ne sont pas les mêmes ;
- les deux algorithmes d'inversion (basés sur la méthode de l'estimation optimale, section 2.2) ne s'appuient pas sur les mêmes hypothèses *a priori*.

C'est l'impact du choix des hypothèses *a priori* que nous allons étudier dans la suite car cela semble l'hypothèse la plus probable pour expliquer des différences qui ont lieu chaque année pour une même région mais pour certains mois seulement.

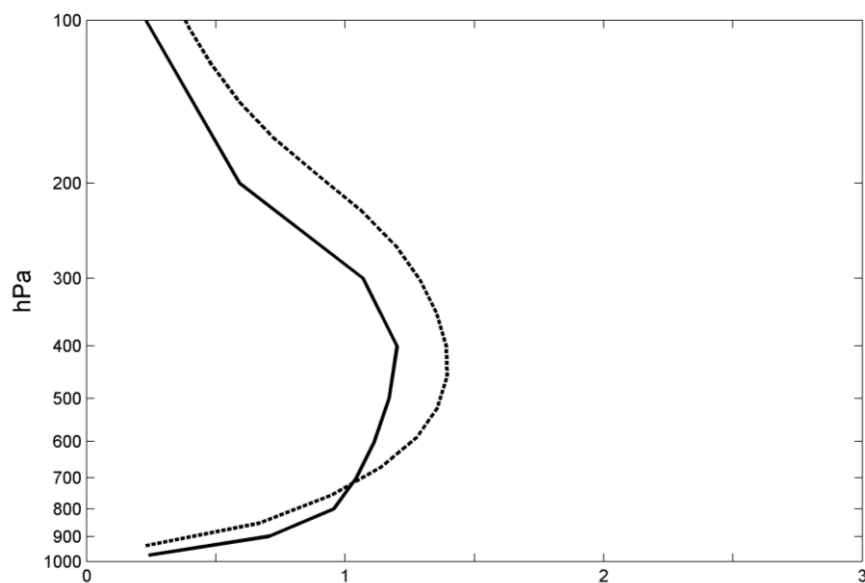


Fig. 5.4 – Fonctions de lissage moyennes pour la colonne totale des restitutions de CO de MOPITT (trait plein) et de IASI (trait pointillé) pour juillet 2009, dans une boîte ($5^{\circ} \times 25^{\circ}$) au-dessus de l'Europe ($46-51^{\circ}\text{N}$; $3-28^{\circ}\text{E}$) (Figure 1 de Innes et al. (2013)).

5.3 Etude de l'impact des hypothèses *a priori* dans le processus d'inversion

L'algorithme d'inversion des données MOPITT v5T, MOPFAS, repose sur l'utilisation d'un profil *a priori* variable en fonction de la localisation et du temps. FORLI utilise un profil *a priori* unique (Fig. 5.5). Afin d'étudier l'impact du choix des hypothèses *a priori* dans le processus d'inversion, nous avons fabriqué un nouveau produit issu de MOPFAS utilisant le profil et la matrice de variance-covariance *a priori* de FORLI.

5.3.1 Profils et matrices de variance-covariance *a priori*

La matrice de variance-covariance *a priori* (S_a) décrit la contrainte de variabilité autour du profil *a priori* (x_a) et les corrélations entre les différentes couches inversées. Les éléments hors-diagonaux (covariance) décrivent les corrélations de la variabilité du CO pour chaque paire de couches.

Pour les produits MOPITT v5T, le profil *a priori* varie en fonction de la localisation et du temps. Il est basé sur une climatologie mensuelle du modèle global de chimie transport MOZART-4²⁸. Des simulations sur une grille de (2.8° x 2.8°) ont été moyennées sur la période 1997-2004. Sur la Fig. 5.5, 60 profils *a priori* de MOPITT v5T sont tracés en bleu (un par boîte de 18° x 60° sur tout le globe, pour le mois de septembre 2010). Pour chaque inversion, la climatologie est interpolée spatialement et temporellement pour correspondre au jour et à la localisation de l'observation. La matrice S_a propose la même variance de 30% pour chaque couche (i.e. la variabilité autorisée autour du profil *a priori* est de 30% pour chaque couche dans MOPFAS). La hauteur de corrélation (relativement faible) qui définit les éléments hors-diagonaux est constante²⁹ (Deeter et al., 2010).

²⁸ Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4.

²⁹ La hauteur de corrélation est exprimée en unité de pression : 100 hPa (cf. Deeter et al. (2010))

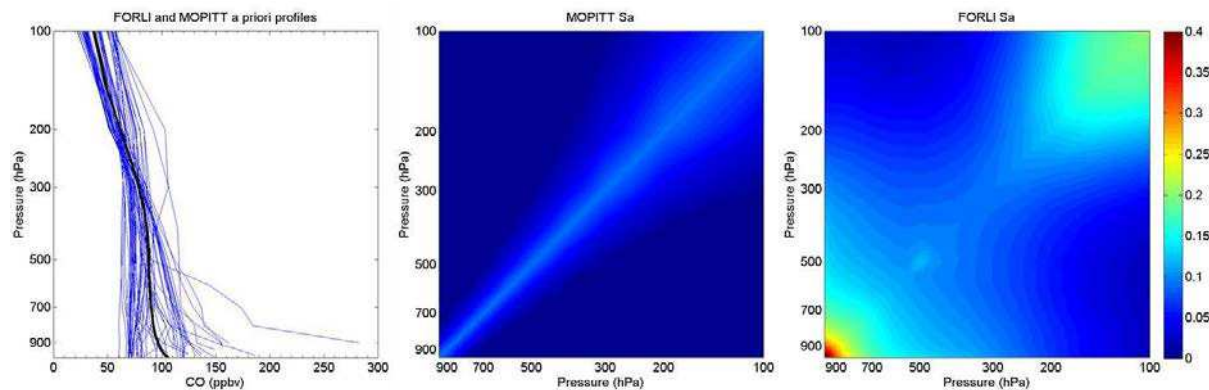


Fig. 5.5 - Profil *a priori* (x_a) unique utilisé par FORLI (en noir) et sélection de profils *a priori* MOPITT (en bleu). Ces derniers correspondent aux différents profils de septembre 2010, sur tout le globe (un profil par boîte de 18° en latitude x 60° en longitude). Matrice de variance-covariance *a priori* (S_a) utilisée par MOPFAS (au milieu) et FORLI (à droite). Les matrices S_a sont exprimées en fraction de variabilité au carré. Le profil x_a et la matrice S_a de FORLI sont également représentés sur la Fig. 2.8.

Comme décrit dans la section 2.3, FORLI-CO repose sur un profil *a priori* de CO construit à partir d'une base de données de profils mesurés par le programme MOZAIC, des profils mesurés par l'instrument satellite ACE-FTS et des profils simulés par le modèle global LMDz-INCA (Turquety et al., 2008, 2009). La matrice S_a est également calculée à partir de ce jeu de données et autorise un maximum de variabilité à la surface (63%), 35% entre 5 et 6 km, environ 30% (comme MOPITT) entre 6 et 10 km, pour réaugmenter et atteindre 45% entre 15 et 16 km (Fig. 5.5).

Le profil x_a et la matrice S_a utilisés dans FORLI sont donc censés être adaptés à toutes les situations rencontrées (situation de fond ou situation exceptionnelle avec des événements de feux par exemple). L'équipe MOPITT a fait l'hypothèse que l'utilisation de plusieurs profils *a priori* issus du modèle MOZART serait plus réaliste que l'utilisation d'un seul profil. Par construction, la matrice S_a utilisée dans MOPITT réduit les effets de « projection » ou encore d'« extrapolation » de l'information d'une couche à l'autre. Les covariances (éléments hors-diagonaux) sont en effet très faibles ou nulles. En revanche, les covariances de la matrice S_a utilisée dans FORLI sont plus élevées d'où des « redistributions » possibles de l'information d'une couche à l'autre lors de l'inversion.

5.3.2 Etudes scientifiques publiées

Quatre études scientifiques ont déjà porté sur le poids des hypothèses *a priori* dans les restitutions des produits CO par la méthode de l'estimation optimale:

- a) Luo et al. (2007) utilisent la méthode d'« ajustement par l'*a priori* »³⁰, proposée par Rodgers et Connors (2003), pour ajuster les profils CO TES avec l'*a priori* utilisé dans la restitution des profils MOPITT. Ensuite les profils MOPITT sont lissés avec les fonctions de lissage de TES ;
- b) Warner et al. (2007) fabriquent un nouveau produit AIRS reposant sur les hypothèses *a priori* de MOPITT ;
- c) Ho et al. (2009) fabriquent un nouveau produit MOPITT reposant sur les hypothèses *a priori* de TES. Puis les nouveaux profils MOPITT sont lissés avec les fonctions de lissage de TES ;
- d) Illingworth et al. (2011a) fabriquent un nouveau produit MOPITT reposant sur les hypothèses *a priori* de IASI-ULIRS³¹. Puis les profils IASI-ULIRS sont lissés avec les fonctions de lissage de ce nouveau produit MOPITT.

Chacune de ces études suit les étapes suivantes :

- 1) les produits issus des deux instruments sont tout d'abord comparés directement ;
- 2) ensuite la comparaison est effectuée avec le produit dont les hypothèses *a priori* ont été modifiées (avec la méthode d'ajustement pour Luo et al. (2007) ou par retraitement des données pour Warner et al. (2007), Ho et al. (2009) et Illingworth et al. (2011a)) ;
- 3) et enfin une dernière comparaison est effectuée après lissage par les fonctions de lissage (sauf pour Warner et al., 2007).

A chaque étape, les différences entre les produits diminuent.

Dans ces travaux, seules les inversions pour des petites régions du globe et/ou des courtes périodes de temps sont analysées. Parfois seuls quelques niveaux verticaux de profils restitués sont comparés. Notre étude est basée sur les 12 régions du globe définies dans la section 4.1.5, sur une période de 5 ans. Le mois d'avril 2010 fera l'objet d'une étude approfondie à l'échelle globale. Les colonnes totales ainsi que les profils restitués seront étudiés.

³⁰ Cette méthode est également utilisée et présentée dans George et al. (2009), cf. section 4.2.

³¹ Algorithme d'inversion développé par l'Université de Leicester à partir des mesures IASI (Illingworth et al., 2011b)

5.3.3 Méthodologie

Afin que l'équipe responsable des données MOPITT au NCAR puisse retraiter les données MOPITT avec les hypothèses *a priori* de FORLI, il a fallu « reconstruire » et « adapter » le profil (x_a) et la matrice de variance-covariance *a priori* (S_a) de FORLI afin qu'ils puissent être « utilisables » par MOPFAS.

Initialement, le profil x_a ainsi que la matrice S_a utilisés par FORLI ont été construits sur 19 couches : de la surface au sommet de l'atmosphère ([0-1 km], [1-2 km],..., [18-60 km]) à partir d'une base de données de profils avion, satellite et simulés par un modèle.

L'inversion de MOPFAS se faisant sur 35 couches (définies sur des niveaux de pression, venant historiquement du modèle MOZART), il a fallu fournir les x_a et S_a de FORLI sur ces 35 couches. Or il est incorrect d'interpoler et/ou d'extrapoler S_a . En effet, la somme des éléments de S_a (qui sont exprimées en colonnes partielles) doit être conservée (entre la matrice 19 x 19 et la matrice 35 x 35) et S_a doit garder ses propriétés (symétrique et définie positive). Nous avons donc construit de « nouveaux » x_a et S_a sur les 35 couches utilisées par MOPFAS, à partir de la base de données qui avait servi à la construction du profil sur 19 couches.

La matrice S_a qui en résulte exprime la variabilité (en facteur d'échelle) au carré (une valeur de 0.01 indique donc une variabilité de 10%). Or MOPFAS est basé sur des calculs en log base 10 pour les restitutions en log(VMR). Sa matrice S_a doit donc s'exprimer en delta log VMR au carré. Il a donc fallu diviser les éléments de S_a par $(\ln(10.))^2$.

Notons que le produit final CO L2 MOPITT n'est disponible que sur 10 couches (même si l'inversion se fait sur 35 couches).

La mise en place de cette expérience a nécessité un an et de nombreuses interactions avec les ingénieurs qui développent les codes de traitement. Le profil x_a et la matrice S_a de FORLI devaient être utilisés correctement dans l'algorithme MOPFAS et les deux équipes (LATMOS-ULB et NCAR) ont itéré et effectué plusieurs jeux de données tests avant de trouver les bons « réglages ». Ce nouveau produit MOPITT est appelé MOPITT vX1 dans la suite du manuscrit.

Dans notre étude, nous n'avons pas procédé au lissage des nouveaux produits MOPITT vX1 avec les fonctions de lissage IASI, ou au lissage des produits IASI avec les fonctions de lissage du nouveau produit MOPITT vX1 (comme cela a pu être fait dans les études déjà publiées présentées dans la section 0). En effet, selon Rodgers (2000), le lissage n'est nécessaire que si les résolutions verticales des instruments dont il est question sont significativement différentes, ce qui n'est pas le cas entre IASI et MOPITT.

5.3.4 Résultats pour les colonnes totales

Les distributions globales des colonnes totales de CO et de DOFS pour IASI, MOPITT v5T et MOPITT vX1 pour le mois d'avril 2010 sont présentées sur la Fig. 5.6. Les DOFS de IASI sont généralement compris entre 1.5 et 2.2 pour les latitudes comprises entre -60° et 60° N, les valeurs les plus importantes se trouvant dans la bande intertropicale, où le contraste thermique est favorable pour une bonne sensibilité de l'instrument (cf. section 4.1.1). Les DOFS de MOPITT (v5T ou vX1), sont généralement compris entre 1 et 1.5 entre -60° et 60° N. C'est près des pôles que les DOFS sont les plus bas pour IASI et MOPITT (ceux de IASI étant supérieurs à ceux de MOPITT) : moins de 0.5.

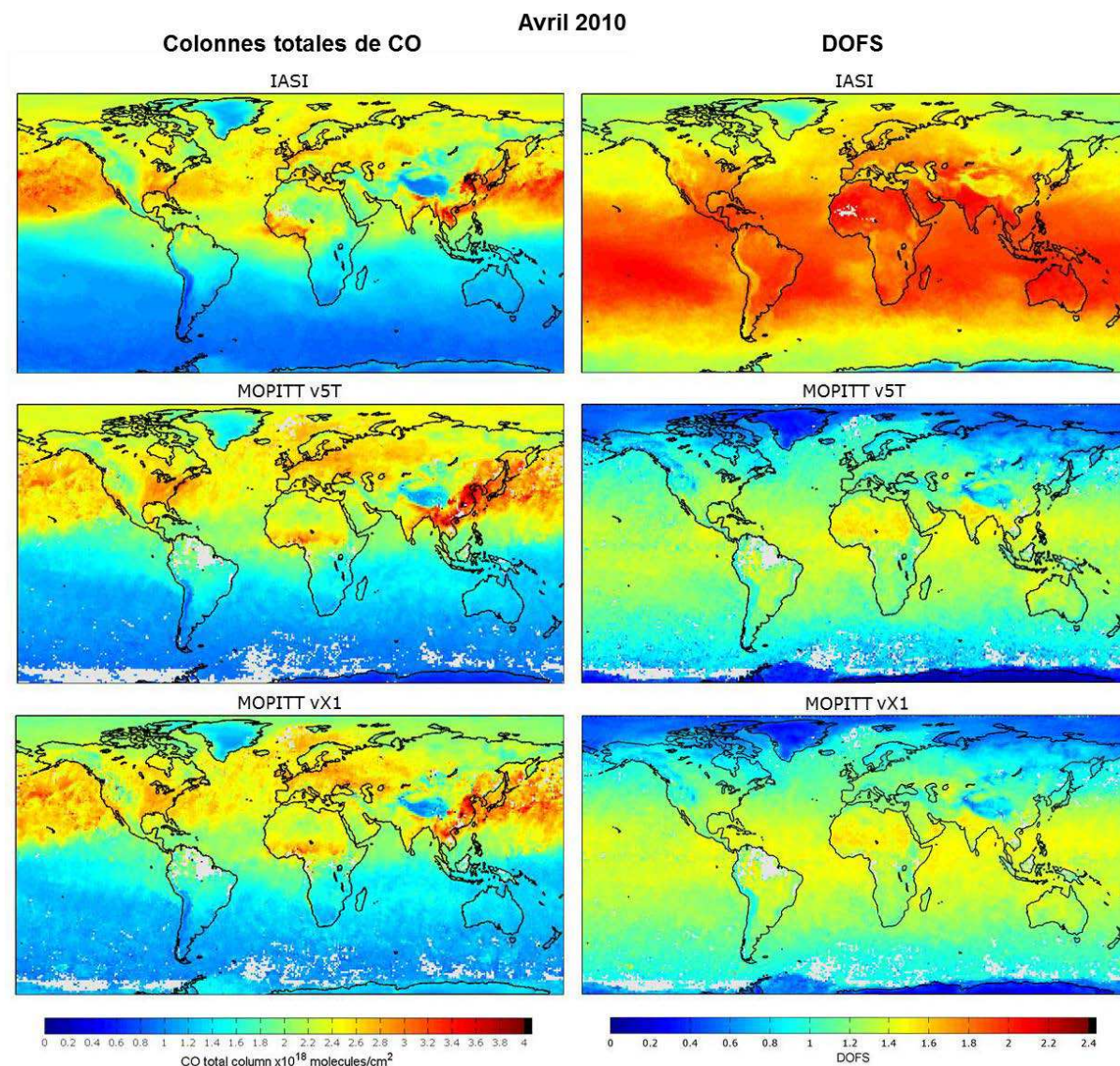


Fig. 5.6 - Distributions de colonnes totales de CO (à gauche) et DOFS (à droite) pour IASI, MOPITT v5T et MOPITT vX1. Les données jour sont moyennées dans une grille $1^\circ \times 1^\circ$. Les cartes représentant les colonnes totales de CO de IASI et MOPITT v5T sont également présentées sur la Fig. 5.1.

Les différences relatives entre MOPITT v5T et MOPITT vX1, et entre IASI et MOPITT vX1 sont présentées sur la Fig. 5.7. Les colonnes totales de CO du nouveau produit MOPITT vX1 sont très proches des colonnes totales de MOPITT v5T pour ce mois excepté sur les régions polaires, le Groenland, la Sibérie, l'Asie, aux moyennes latitudes de l'hémisphère sud au-dessus des océans et au large de New-York et du Mexique. Des différences entre 10 et 25% (MOPITT v5T > MOPITT vX1) sont relevées en Asie. Les différences entre les produits IASI et MOPITT vX1 sont généralement comprises entre $\pm 15\%$ entre -60° et 60°N , les colonnes MOPITT étant en moyenne supérieures aux colonnes IASI au-dessus des continents. Aux

pôles, les différences peuvent atteindre 25-30% : les colonnes totales de MOPITT vX1 étant supérieures aux colonnes de MOPITT v5T au pôle sud et inférieures du pôle nord. En comparant la distribution des différentes relatives entre les colonnes totales de IASI et MOPITT vX1 avec la distribution des différences relatives entre les colonnes totales de IASI et MOPITT v5T (Fig. 5.1), nous voyons que si l'écart entre les données IASI et MOPITT a diminué localement comme sur l'Asie ou le Groenland par exemple, il a augmenté sur de larges zones comme les moyennes latitudes de l'hémisphère sud au-dessus des océans et aux hautes latitudes de l'hémisphère nord.

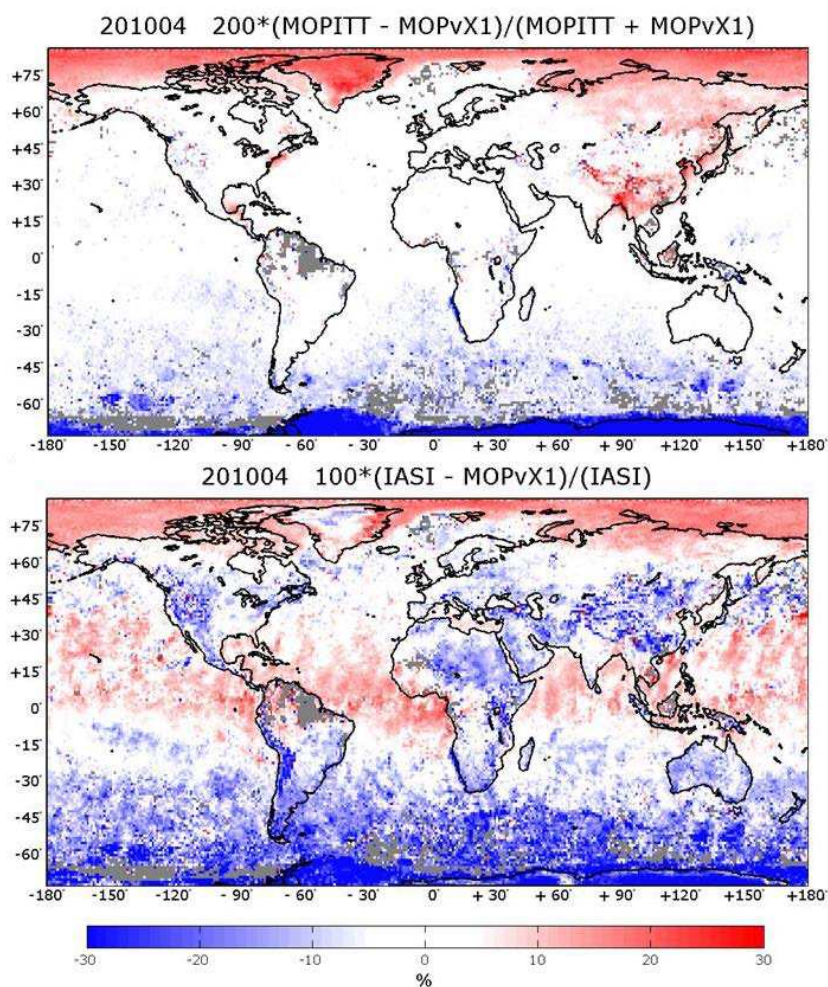


Fig. 5.7 - Différences relatives entre les colonnes totales moyennes représentées sur la Fig. 5.6: entre MOPITT v5T et MOPITT vX1 (en haut), et entre IASI et MOPITT vX1 (en bas).

Maintenant que nous avons détaillé les changements à l'échelle globale, concentrons-nous sur les modifications apportées sur la variabilité temporelle des colonnes totales de CO. Pour ce faire, nous avons recalculé les séries temporelles sur les 12 régions de notre étude avec les données MOPITT vX1. Sur la Fig. 5.8, nous présentons les différences relatives entre les

données IASI et les données MOPITT v5T d'une part et les données MOPITT vX1 d'autre part. La Table 5.2 fournit pour les années de 2008 à 2012 et pour chaque région, les valeurs moyennes des différences relatives et l'écart type associé ainsi que les moyennes des valeurs absolues des différences relatives et l'écart type associé.

Sur la Fig. 5.8, nous voyons que, suivant les régions, l'introduction des hypothèses *a priori* de FORLI dans MOPFAS a différents effets. Pour les régions « China », « Calcutta », « USA », « Europe », « San Francisco » et « Pacific », les séries temporelles sont décalées vers le haut pour les régions de l'hémisphère nord et vers le bas pour la région « Pacific » dans l'hémisphère sud. Pour ces 5 régions, la modification des hypothèses *a priori* dans l'inversion des données MOPITT entraîne une diminution des colonnes totales de MOPITT dans l'hémisphère nord et une augmentation pour la région « Pacific » dans l'hémisphère sud. Pour les régions « Atlantic », « Desert » et « Teheran », les différences relatives entre les données IASI et les 2 versions des données MOPITT sont très proches (inférieures à 15%). Pour les régions « Forest », « Africa », « Europe » et « Mexico city », les deux comportements précédents sont observés, suivant les périodes de mesure.

Sur la Fig. 5.8 nous avons également représenté (en gris) les écarts types des moyennes des colonnes totales de IASI (en pourcentage). Nous constatons que les différences relatives entre les données IASI et les données MOPITT (v5T et vX1) sont inférieures à la variabilité des colonnes totales de IASI pour les régions « China », « Africa », « Forest » et « Mexico city », ce qui confirme le bon accord entre les données de colonnes totales de IASI et celles de MOPITT (v5T et vX1). C'est aussi le cas sur la majorité de la période étudiée pour les régions « San Francisco », « Calcutta » et « Pacific ». Pour les régions « Europe » et « USA », les différences relatives sont inférieures à la variabilité des colonnes totales de IASI, sauf en hiver. Enfin, pour les régions « Teheran », « Desert » et « Atlantic », les différences relatives sont généralement plus élevées que la variabilité, révélant pour ces régions des différences significatives entre les colonnes totales de IASI et celles de MOPITT.

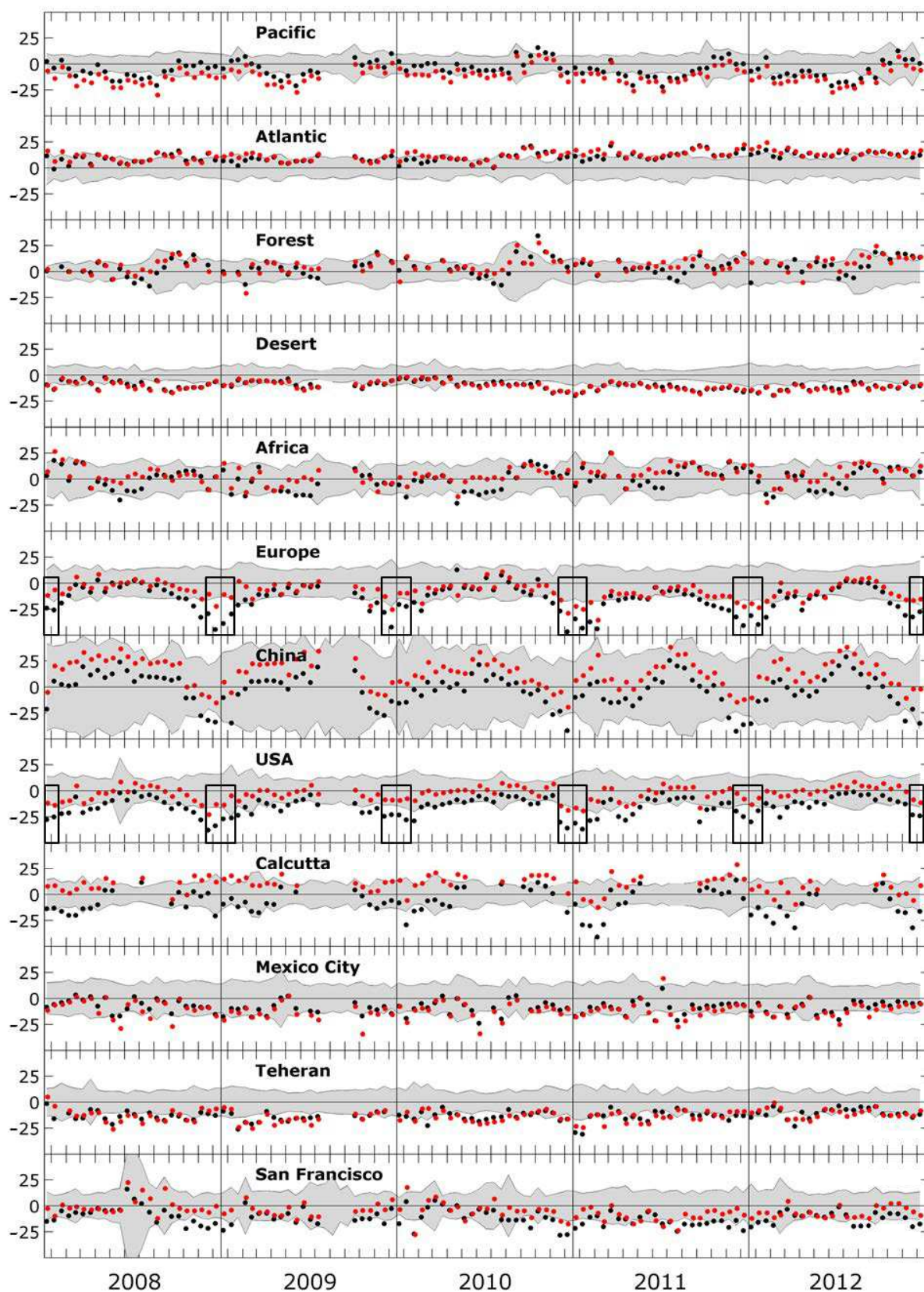


Fig. 5.8 - Différences relatives (en %) entre les données IASI et MOPITT v5T (en noir) et IASI et MOPITT vX1 (en rouge) : $100 \cdot (IASI - MOPITT) / (IASI)$. La zone grisée représente les écarts types en pourcentage correspondant aux moyennes des colonnes totales de IASI.

Dans la Table 5.2, nous remarquons que pour les régions « Europe » et « USA », où on relevait les biais moyens les plus élevés entre IASI et MOPITT v5T, en décembre et en janvier chaque année, les biais moyens diminuent entre IASI et MOPITT vX1: les colonnes totales de MOPITT vX1 sont en moyenne supérieures aux colonnes IASI de 15.6% pour la région « Europe » et de 11% pour la région « USA », pour ces deux mois (contre 33% et 27.5% pour IASI versus MOPITT v5T).

Table 5.2 - Différences relatives moyennes ($100 \cdot (\text{IASI} - \text{MOPITT}) / \text{IASI}$) et moyennes des valeurs absolues des différences, avec leurs écarts types, entre les colonnes totales moyennes de IASI et celles de MOPITT v5T d'une part (en noir, également présentées dans la Table 5.1) et entre les colonnes totales moyennes de IASI et celles de MOPITT vX1 d'autre part (en rouge). Pour les régions « Europe » et « USA », les valeurs en gras correspondent aux mois de décembre et janvier (indiquées DJ).

	IASI / MOPITT v5T		IASI / MOPITT vX1		IASI / MOPITT v5T		IASI / MOPITT vX1	
Regions	Mean bias	Mean std	Mean bias	Mean std	Mean abs bias	Mean std	Mean abs bias	Mean std
Pacific	-4.9	8.1	-10.6	7.1	7.7	5.4	11.3	5.9
Atlantic	10.4	4.5	12.9	5.3	10.4	4.4	12.9	5.3
Forest	4.6	8.5	6.8	8.1	7.7	5.8	8.1	6.7
Desert	-9.9	3.9	-9.8	3.6	9.9	3.9	9.8	3.6
Africa	-0.2	10	4.1	8.7	8.5	5.4	7.3	6.2
China	-2.7	15.7	15.7	15.5	12.4	9.9	18.3	12.2
Europe	-14.9 -33 DJ	12.7 7.9 DJ	-7.2 -15.6 DJ	7.6 5.4 DJ	15.6 33 DJ	11.8 7.9 DJ	8.4 15.6 DJ	6.2 5.4 DJ
Mexico city	-8.3	6.3	-10.5	7.1	8.8	5.6	11	6.3
Teheran	-12.9	5	-12.4	5	12.9	5	12.5	4.7
San Francisco	-11.2	7.7	-4.6	7.5	11.9	6.6	7.2	5.2
Calcutta	-7.5	12.1	10.4	8.6	11.4	8.5	11.7	6.7
USA	-15.1 -27.5 DJ	8.9 5.4 DJ	-2.8 -11 DJ	6.5 4.5 DJ	15.1 27.5 DJ	8.9 5.4 DJ	5.4 11 DJ	4.5 4.5 DJ

L'évolution de la moyenne des différences relatives sur la période de 2008 à 2012 entre les deux versions des données MOPITT (Table 5.2) nous renseigne sur la modification globale de la série temporelle des différences relatives entraînée par le changement de version. Elle confirme ce que nous avons observé sur les courbes de la Fig. 5.8. Pour les régions « China », « Calcutta », « USA » et « San Francisco », cette moyenne augmente alors que pour la région « Pacific », elle diminue. Pour les régions « Atlantic », « Desert » et « Teheran », elle reste du même ordre. La modification des hypothèses *a priori* dans le code d'inversion MOPFAS n'augmente pas les écarts types calculés.

La moyenne des valeurs absolues des différences relatives permet de mesurer un biais effectif et de voir son évolution lors du changement de version des données MOPITT. Pour les régions « Atlantic », « Forest », « Desert », « Africa », « Teheran » et « Calcutta », le biais n'est pas modifié par le changement de versions des données MOPITT. Pour les régions « Europe », « San Francisco » et « USA », le biais diminue significativement et il augmente significativement sur la région « Pacific ». Pour les régions « China » et « Mexico city », le biais augmente mais plus faiblement.

Attachons nous à présent à étudier les corrélations présentées sur la Fig. 5.9. Appellons r , le coefficient de corrélation entre les colonnes totales de CO MOPITT v5T et les colonnes IASI (en noir), et r_{X1} , le coefficient de corrélation entre les colonnes totales MOPITT vX1 et les colonnes IASI (en rouge).

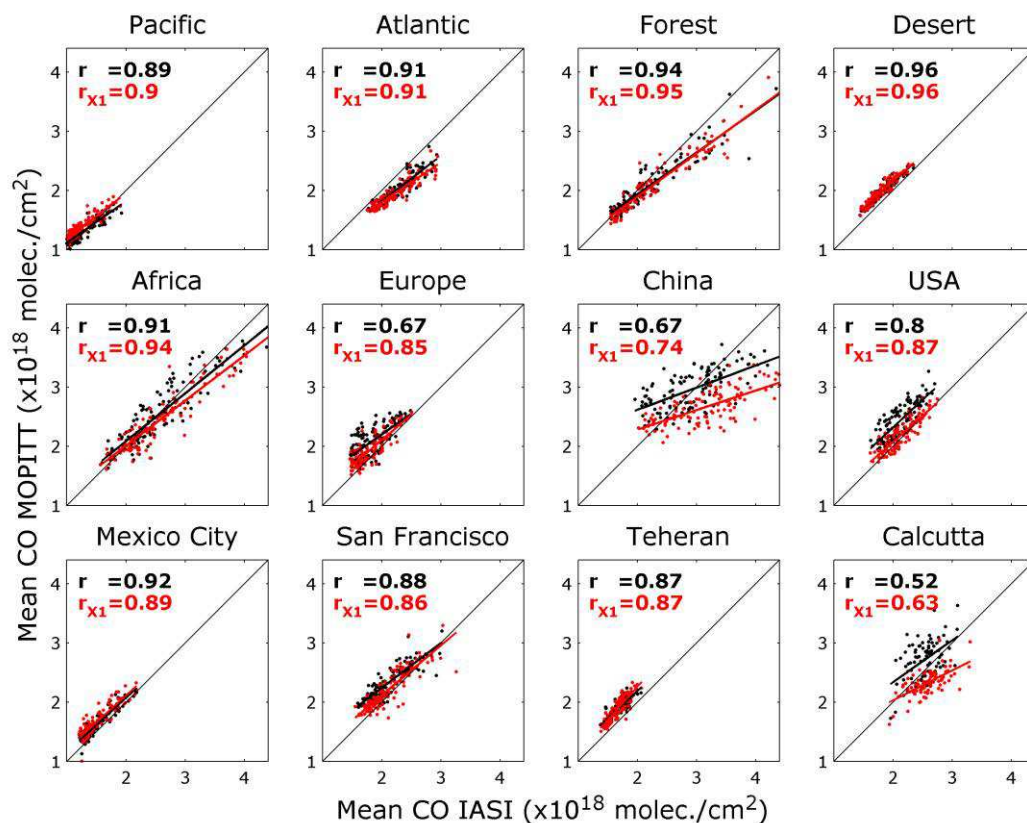


Fig. 5.9 - Corrélation des colonnes totales de CO de MOPITT v5T (en noir) et MOPITT vX1 (en rouge) en fonction des colonnes totales de CO de IASI. Les coefficients de corrélation (r et r_{X1} , de Pearson) correspondants sont indiqués pour chaque région.

Nous notons que les r_{X1} sont soit du même ordre de grandeur, soit plus élevés que les r pour toutes les régions, sauf pour Mexico city. Utilisant les hypothèses *a priori* de IASI, on s'attend en effet à ce que les r_{X1} soient plus élevés que les r , i.e. que les corrélations soient meilleures entre les données IASI et MOPITT v_{X1} que les corrélations entre IASI et MOPITT v_{5T} . Sur la première ligne de la Fig. 5.9, r et r_{X1} sont quasiment identiques pour les régions « Pacific », « Atlantic », « Forest » et « Desert ». Sur la deuxième ligne, pour les régions « Africa », « Europe », « China » et « USA », les r_{X1} sont plus élevés que les r . Enfin, au-dessus des villes (3^{ème} ligne de la Fig. 5.9), r_{X1} est supérieur à r pour Calcutta, r_{X1} est égal ou quasi-égal à r pour Teheran et San Francisco et r_{X1} est inférieur à r pour Mexico city.

C'est pour la région « China » que les pentes des droites de régression linéaire sont les plus faibles. Les colonnes totales de CO MOPITT varient dans un intervalle beaucoup moins larges que les colonnes totales de IASI (on retrouve cette information dans la Table 5.1 où l'écart type de la moyenne des colonnes totales de CO IASI est le double de celui de MOPITT).

En conclusion, les corrélations sont soit les mêmes, soit meilleures avec le nouveau produit MOPITT v_{X1} (sauf pour Mexico city).

5.3.5 Résultats pour les profils

Nous avons étudié les profils de l'année 2010 au-dessus des 12 régions, et ce pour 3 journées de chaque mois. Pour chaque région, nous présentons ici les profils d'une journée, représentative de l'allure des profils sur l'année (Fig. 5.10) (sauf pour la région « Africa » où nous avons choisi un jour en août, au moment de la saison des feux). Tous les profils restitués par les deux instruments dans la boîte correspondante (de $5^\circ \times 5^\circ$ ou $2^\circ \times 2^\circ$) sont tracés ; les profils *a priori* sont tracés en noir.

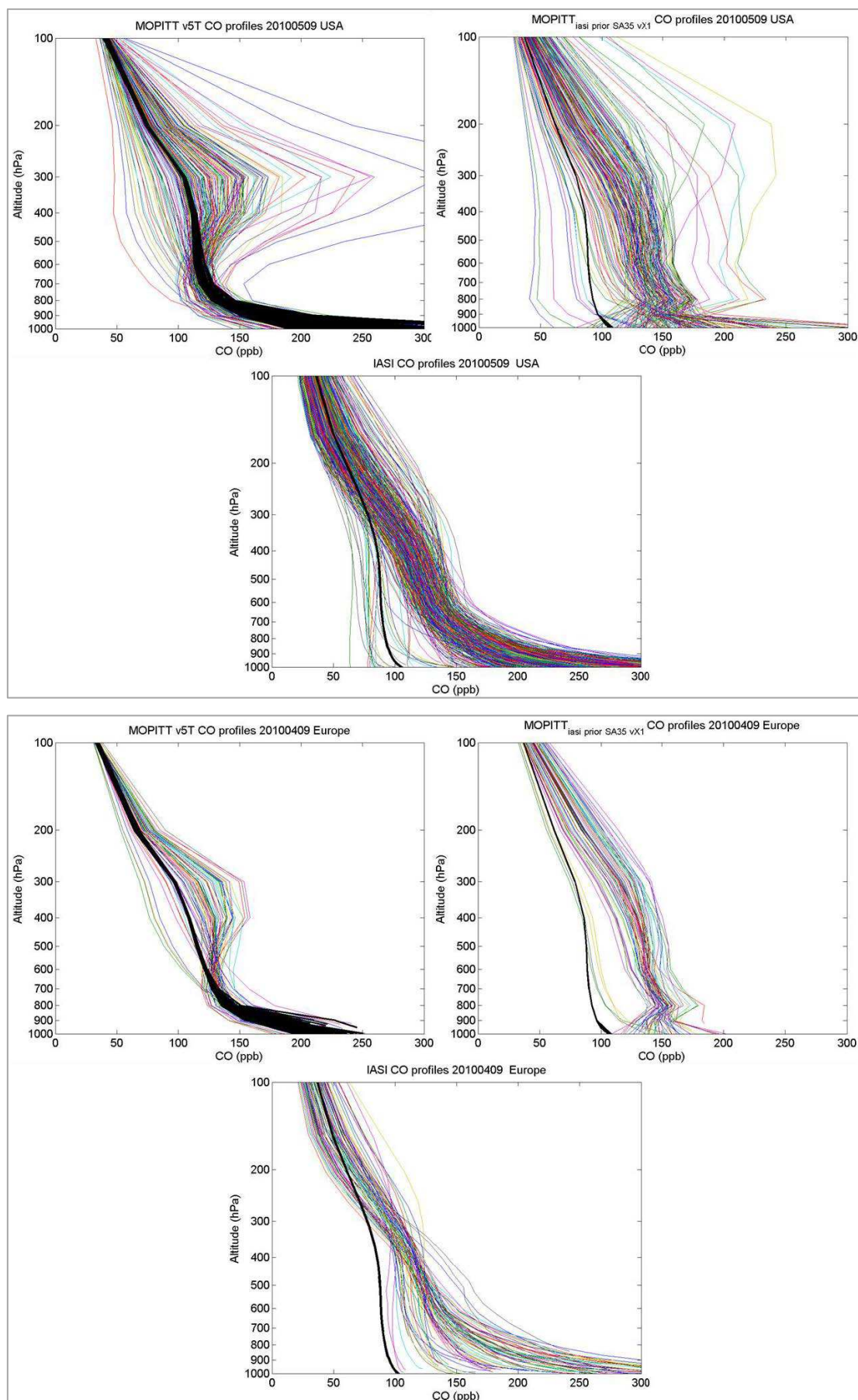
L'instrument MOPITT possède un canal sensible aux pressions entre 300 et 400 hPa (7-9 km). Quand le signal montre une signature de CO, les fortes concentrations auront tendance à être « mises » à cette altitude par l'algorithme de restitution en limitant la répartition dans plusieurs couches grâce à la matrice S_a quasi-diagonale. Les profils pointent à

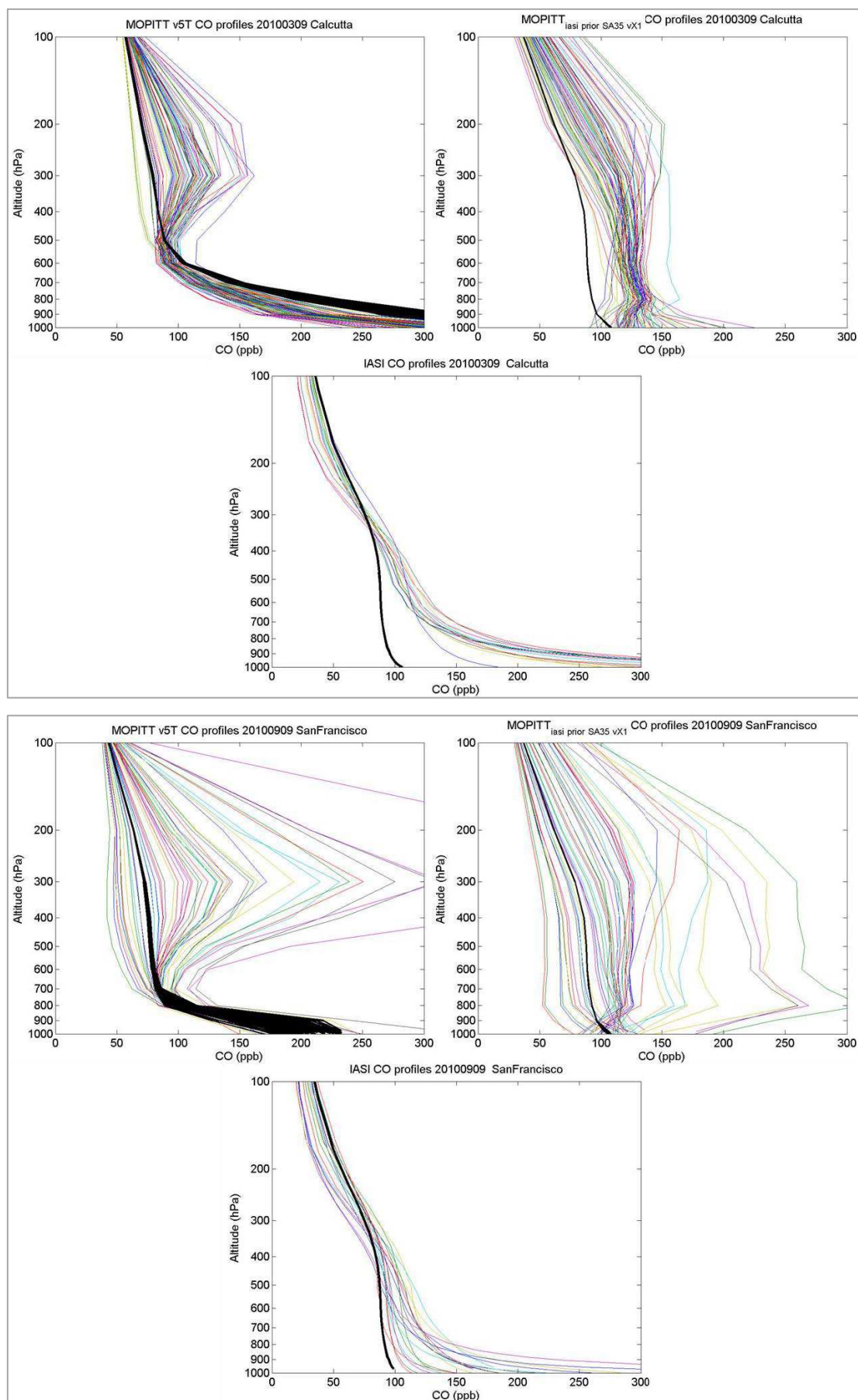
cette altitude, s'éloignant du profil *a priori*. A la surface, les profils restitués MOPITT « collent » au profil *a priori*.

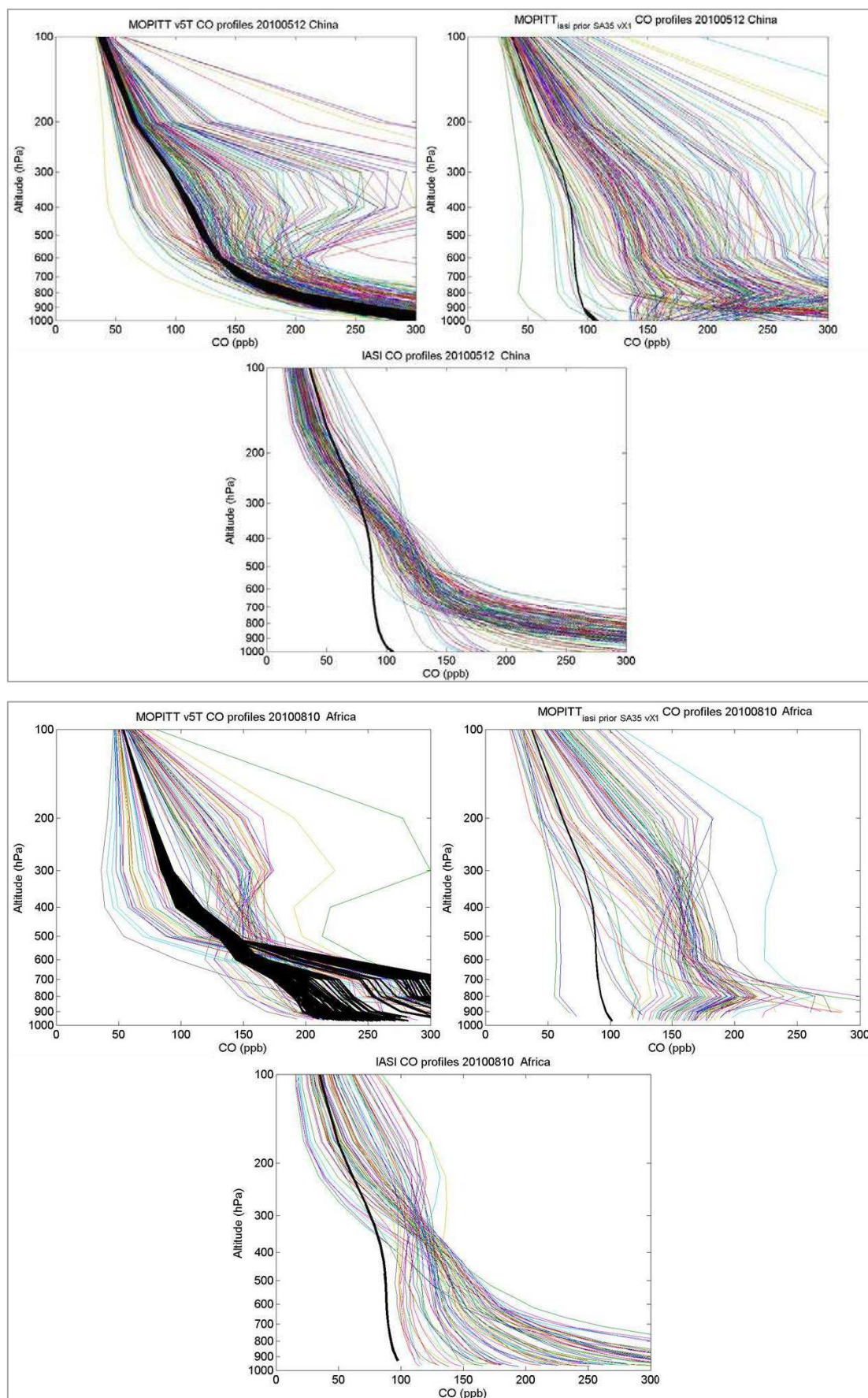
En revanche, les profils IASI restitués par FORLI montrent en général un maximum de concentration de CO près de la surface. Les profils s'éloignent du profil *a priori* pour atteindre des valeurs de 500 ppb pour les régions « Europe » ou « USA », ou encore 1000 ppb au-dessus de la Chine.

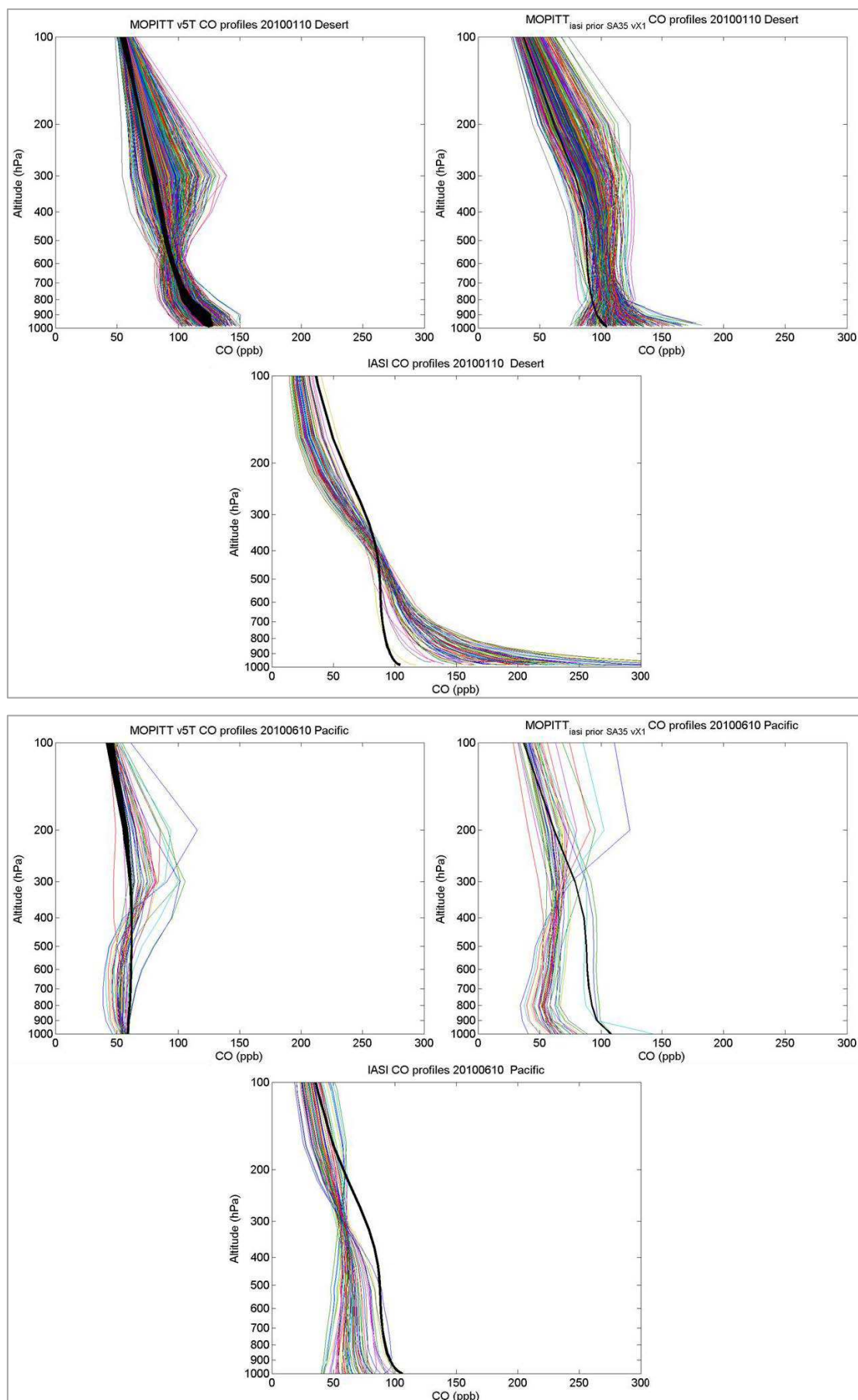
Au-dessus de la région « Desert », où les colonnes totales de IASI et de MOPITT sont les mieux corrélées ($r=0.96$), avec un biais moyen de -10% ($IASI < MOPITT$; pour les 5 ans étudiés), l'allure des profils est caractéristique de ce que nous notons en général : le CO est « mis » vers 300 hPa (~9 km) pour MOPITT, et près de la surface pour IASI. Au-dessus de la région « Atlantic », où les colonnes totales de IASI sont systématiquement plus élevées que celles de MOPITT (de 10.4% en moyenne sur la période de l'étude), les profils MOPITT montrent des concentrations élevées vers 200-300 hPa (9-11 km) alors que FORLI restitue de fortes concentrations près de la surface. Dans cette région, on s'attendrait plutôt à des concentrations élevées en altitude, signe du transport du CO émis par les feux en Afrique centrale.

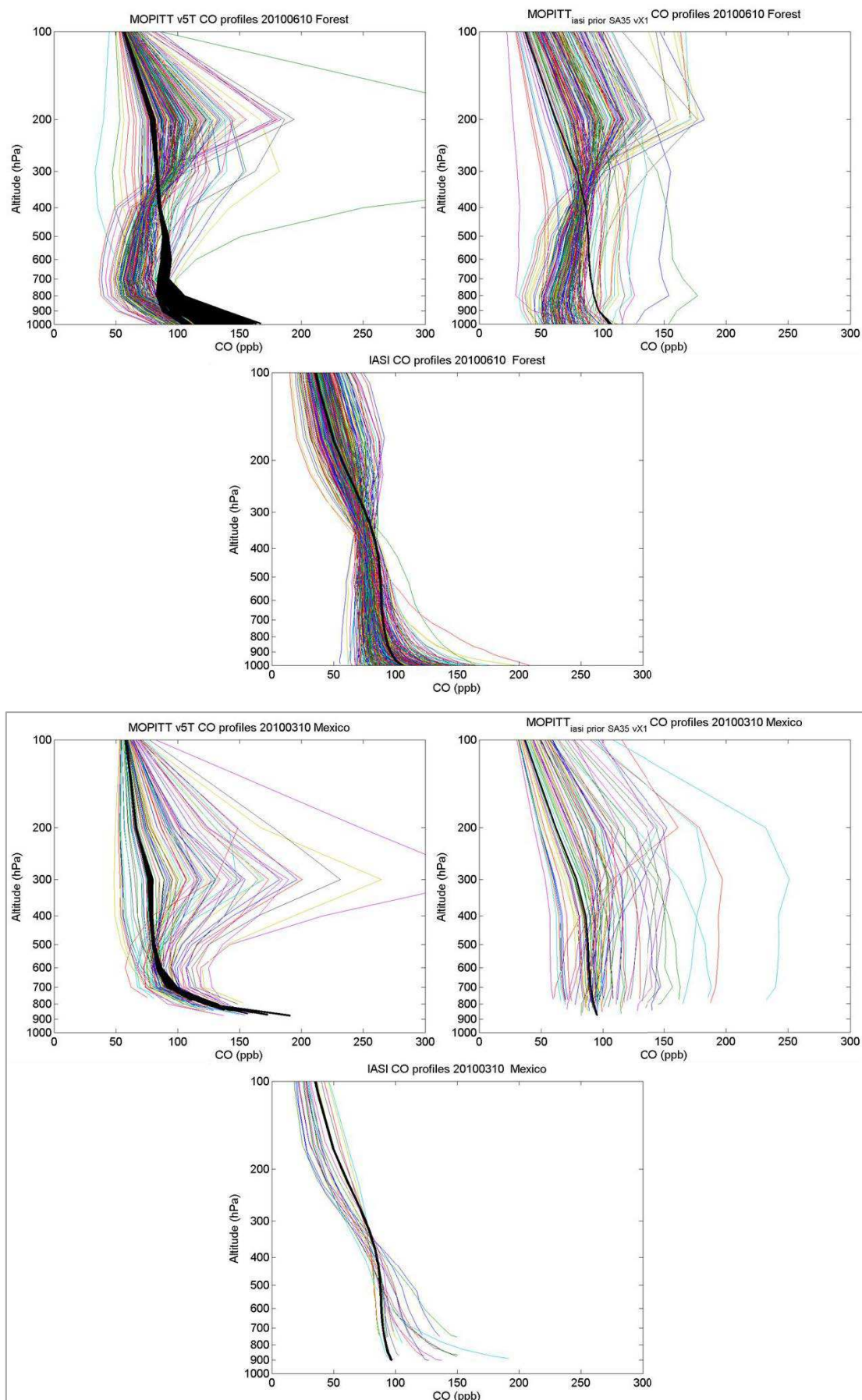
Pour les profils MOPITT vX1, les profils ne montrent plus de pics aussi marqués que les profils MOPITT v5T, le CO est réparti sur les couches atmosphériques voisines, et ce pour toutes les régions (sauf au-dessus de l'Atlantique où le pic de CO est vu un peu plus haut). Les profils MOPITT vX1 ne collent plus au profil *a priori* près de la surface mais ont tendance à s'en éloigner, même si les valeurs de MOPITT v5T (*a priori*) ou de IASI ne sont pas atteintes. Ceci est l'effet de la matrice S_a qui autorise une variabilité maximale à la surface (63%) et de fortes corrélations entre les couches.











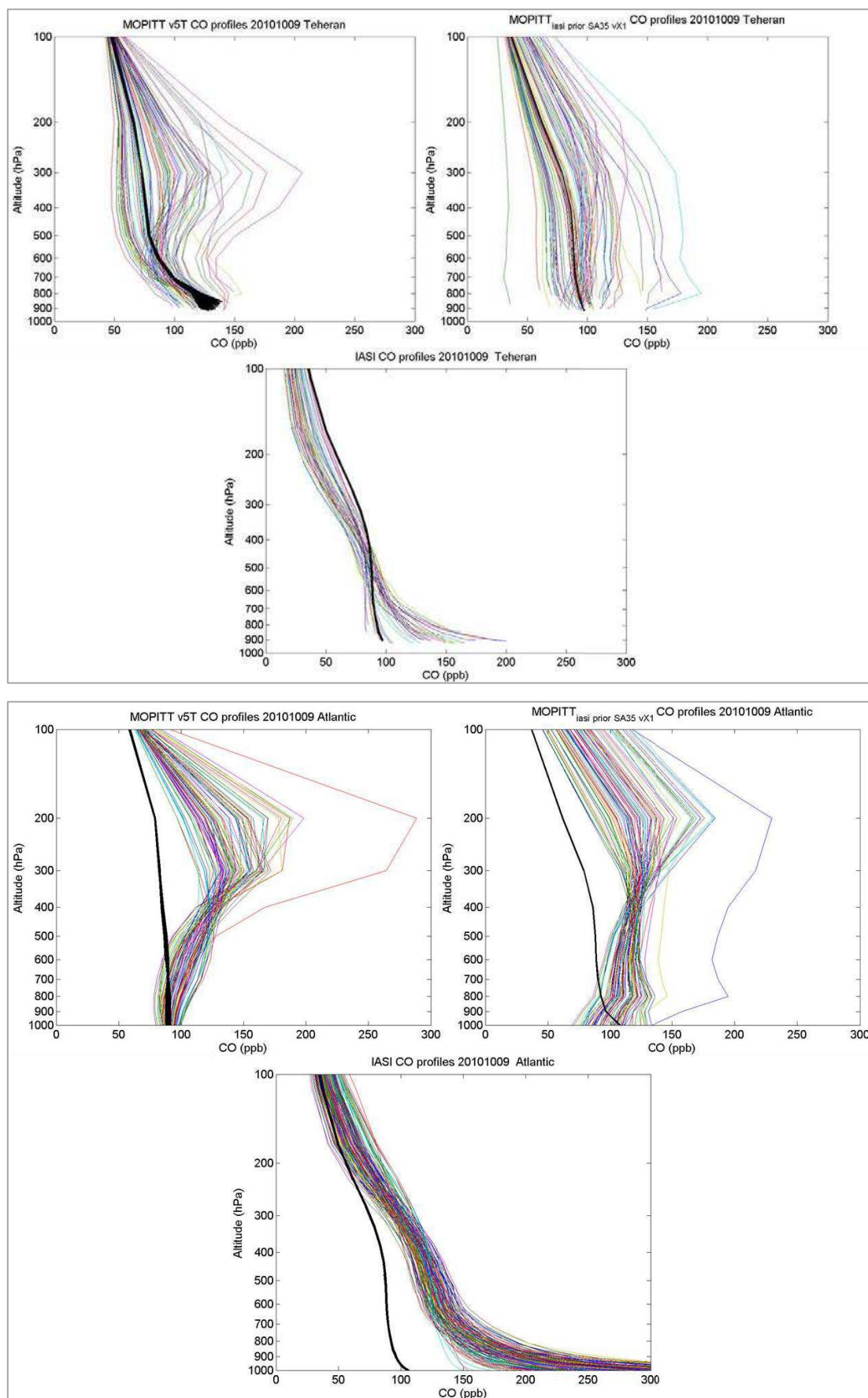


Fig. 5.10 - Profils de CO restitués par MOPFAS v5T, vX1 et FORLI pour les 12 régions, pour une journée de 2010. Tous les profils dans la boîte définie au-dessus de la région ($5^\circ \times 5^\circ$ et $2^\circ \times 2^\circ$ au-dessus des villes) sont tracés. Les profils *a priori* sont tracés en noir.

5.4 Etudes de cas

5.4.1 Sur le Canada, loin des sources de CO

Etudions à présent 3 cas où les profils IASI et MOPITT (v5T et vX1) sont colocalisés (à une distance d'au plus 0.1° de latitude et de longitude, c'est-à-dire ici dans un rayon de moins de 15 km). Les fonctions de lissage correspondantes sont également présentées.

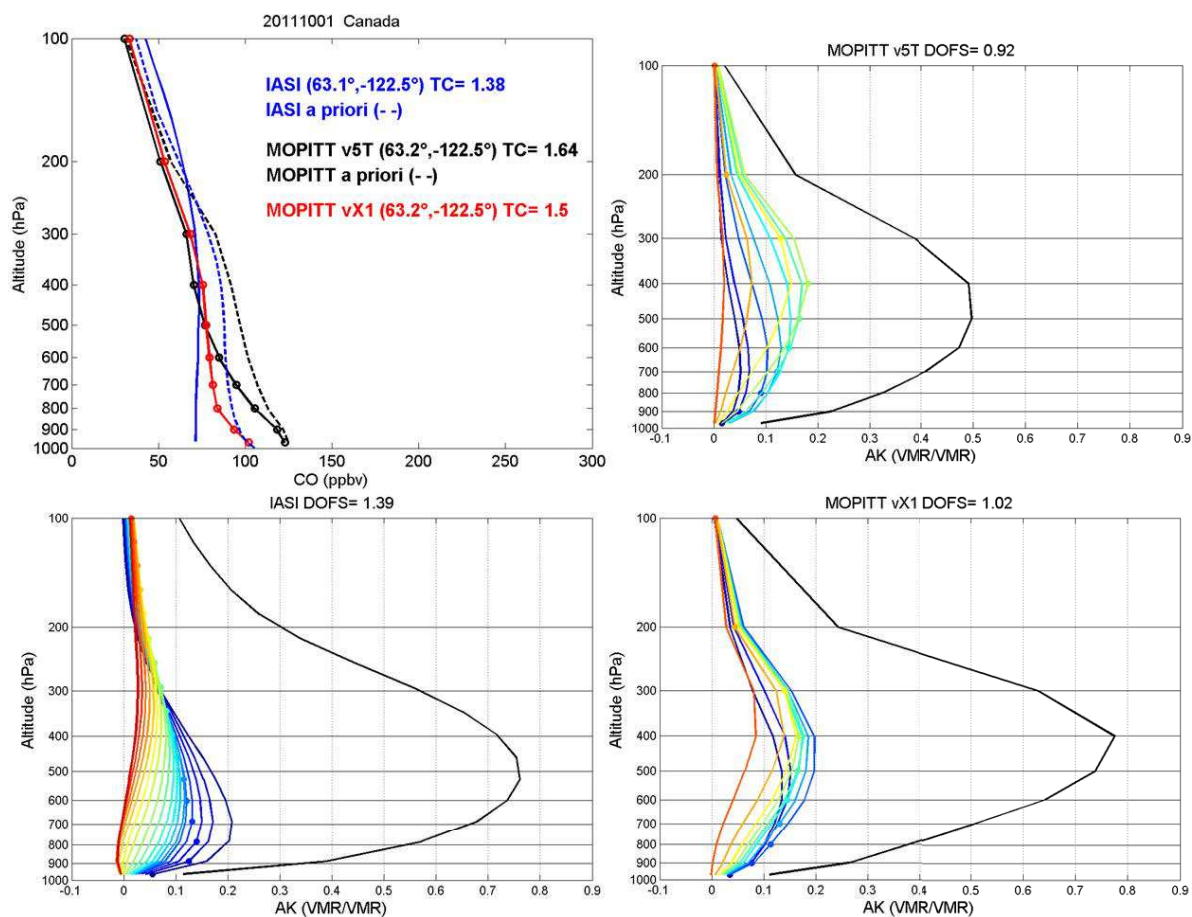


Fig. 5.11 - Profils de rapport de mélange de CO et fonctions de lissage en fonction de l'altitude, restitués par IASI, MOPITT v5T et MOPITT vX1 colocalisés au-dessus du Canada. Pour chacun des 3 produits, la fonction de lissage correspondant à la colonne totale (somme des lignes de la matrice des fonctions de lissage, ici divisée par 2 pour des questions de représentation) est tracée en noir. Les valeurs des colonnes totales ($\times 10^{18}$ molécules/cm²) et DOFS sont également indiquées.

Dans ce premier cas au-dessus du Canada (Fig. 5.11), les colonnes totales restituées sont de l'ordre de 1.5 molécules/cm². Les profils inversés montrent moins de CO que les profils *a priori* correspondants. Il s'agit d'un cas avec des concentrations de CO de fond. Comme le montrent les fonctions de lissage, le maximum de sensibilité de IASI se situe vers 500-600 hPa et celui de MOPITT vers 400 hPa. De plus, les deux instruments sont très peu sensibles à la surface. C'est pourquoi les profils MOPITT v5T et vX1 collent à leur *a priori* à la surface alors que le profil IASI s'en éloigne du fait des valeurs élevées des éléments diagonaux de la matrice S_a pour les couches proches de la surface. Les concentrations restituées au voisinage de la surface par IASI sont moins contraintes que celles de MOPITT car l'incertitude *a priori* de IASI est plus élevée. Notons que les fonctions de lissage de la colonne totale (tracées en noir) pointent vers 400 hPa pour les 3 produits.

5.4.2 Sur la Chine, dans une région source de CO

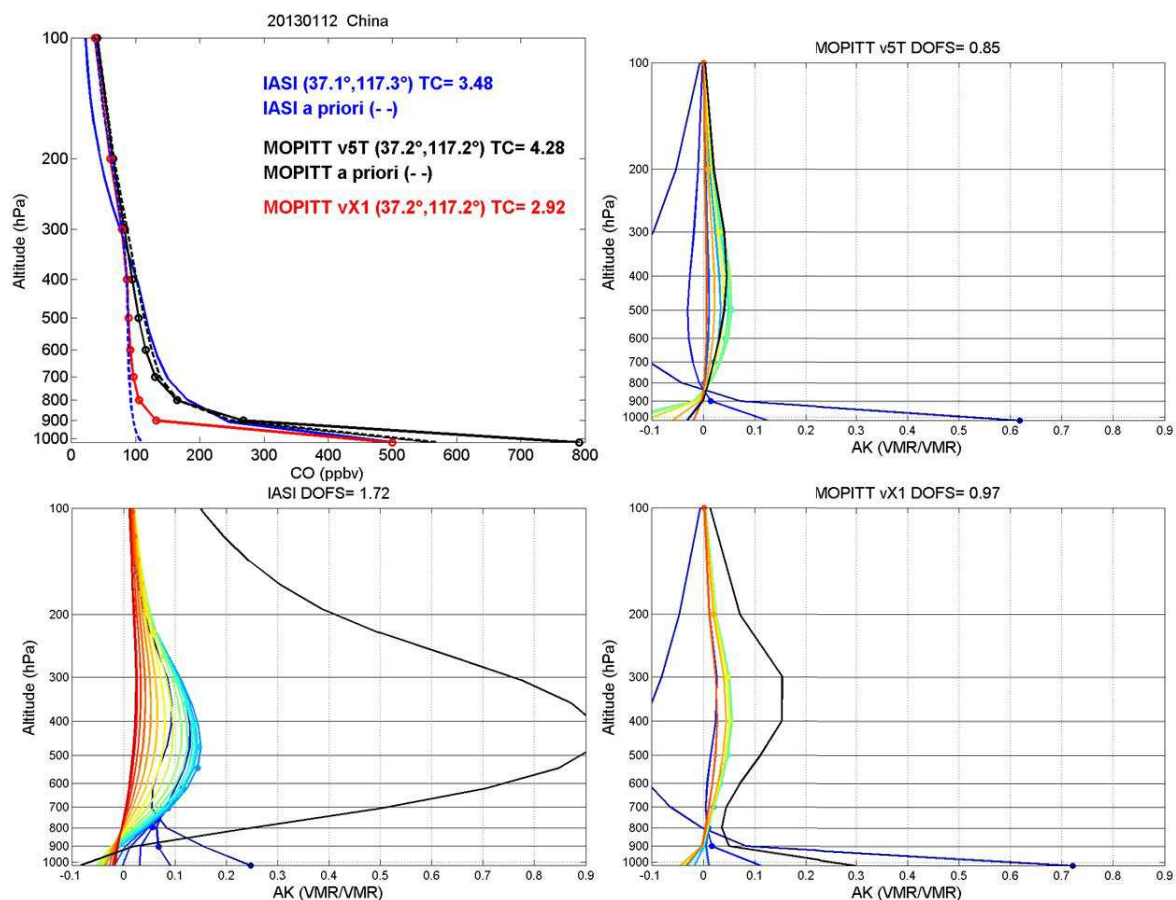


Fig. 5.12 - Même figure que la Fig. 5.11 mais pour un cas au-dessus de la Chine. Attention, ici la limite supérieure de l'axe des abscisses pour les profils de rapport de mélange est fixée à 800 ppbv.

En janvier 2013, IASI a relevé de fortes concentrations de CO en Chine (Fig. 5.12) suite à un épisode de pollution. Dans le cas présenté, IASI et MOPITT sont sensibles près de la surface comme le montrent les fonctions de lissage. Le profil *a priori* de MOPITT v5T atteint presque 600 ppbv pour la première couche. La variabilité autorisée à la surface pour MOPITT v5T (30% de l'*a priori*, donc très importante dans ce cas) est plus élevée que la variabilité autorisée par FORLI. Le profil restitué par MOPITT v5T atteint 790 ppbv à la surface. Le profil MOPITT vX1, dont la variabilité autorisée est celle de FORLI n'atteint que 500 ppb, comme le profil IASI. En revanche, l'instrument MOPITT tire peu d'informations des couches supérieures : les profils MOPITT v5T et vX1 restent alors proches de leur *a priori*.

5.4.3 Sur les Etats-Unis, sur le trajet d'un panache de feux

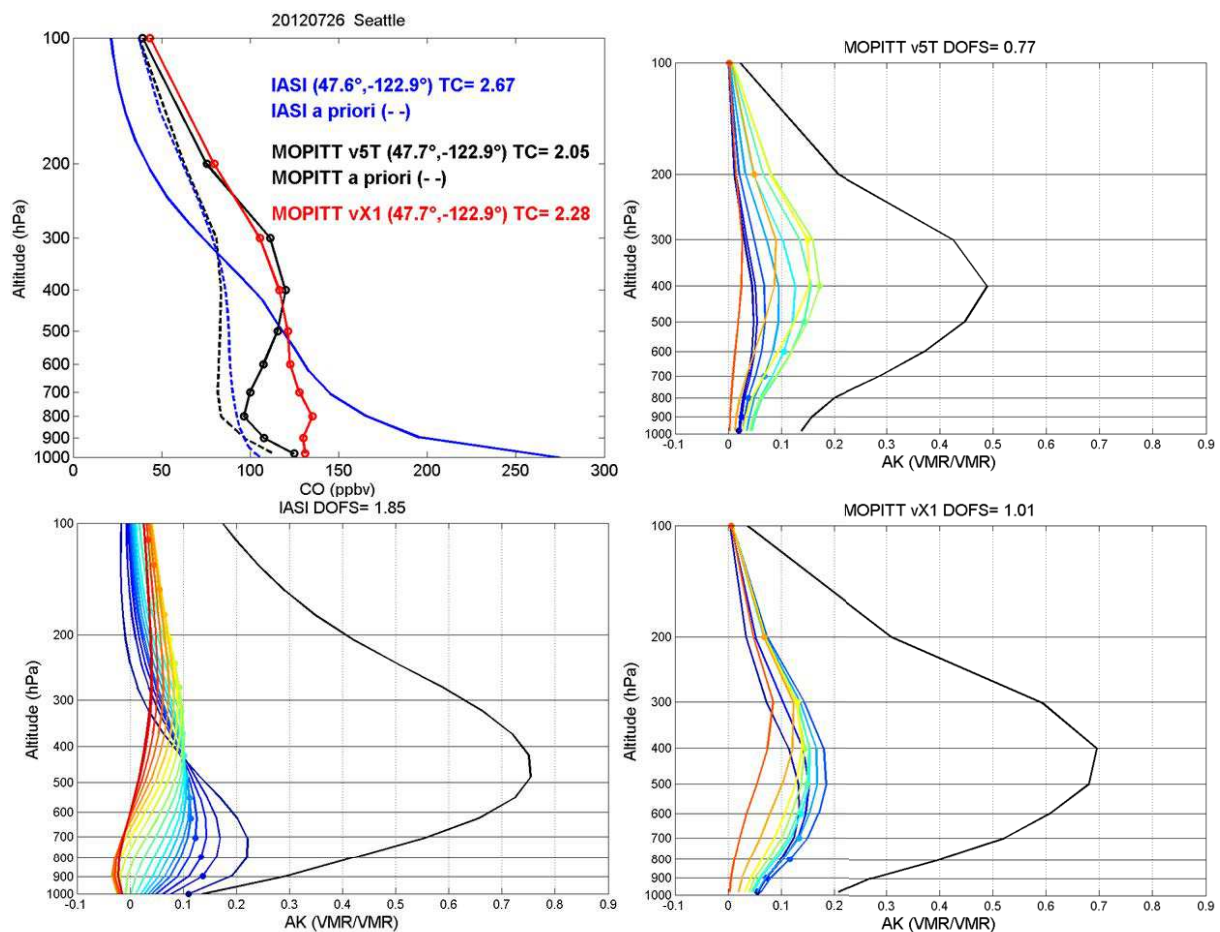


Fig. 5.13 - Même figure que la Fig. 5.11 mais pour un cas au-dessus de Seattle.

Dans le cas d'étude au-dessus de Seattle (Fig. 5.13), la colonne totale de IASI est supérieure de 30% à celle de MOPITT v5T. Les fonctions de lissage de IASI montrent une sensibilité de l'instrument vers 600 hPa. L'instrument MOPITT est sensible un peu plus haut, vers 400-450 hPa. Un panache de CO venant des feux de Sibérie atteint Seattle le 26 juillet 2012 (cf. cartes de CO IASI sur <http://www.pole-ether.fr>). MOPITT voit ce panache vers 400 hPa et IASI vers 600 hPa, mais cette quantité est redistribuée ou extrapolée à la surface à cause de la matrice S_a . Le profil de MOPITT vX1 est plus « plat » que le profil de MOPITT v5T : il extrapole les concentrations qu'il voit vers 450 hPa vers le bas de la troposphère, à cause de la matrice S_a de FORLI. Dans ce cas, on ne sait pas exactement à quelle altitude le panache est transporté.

Pour ces 3 cas, les DOFS IASI sont supérieurs aux DOFS de MOPITT v5T et l'introduction des hypothèses *a priori* de FORLI dans le code MOPFAS entraîne une légère augmentation des DOFS.

5.5 Conclusion

Il existe plusieurs raisons pour expliquer les différences entre les concentrations de CO restituées à partir des données IASI et celles restituées à partir des données MOPITT. Les instruments sont intrinsèquement différents et ne sondent pas forcément exactement les mêmes situations aux mêmes moments. Les données de température, d'humidité et d'émissivité utilisées dans les processus d'inversion ne sont pas les mêmes. Les deux algorithmes d'inversion font appel à des hypothèses *a priori* différentes. On ne s'attend donc pas à trouver un accord parfait entre les produits CO de IASI et ceux de MOPITT, même en modifiant les hypothèses *a priori* dans MOPFAS.

Les colonnes totales de CO IASI et MOPITT sont en bon accord, avec des biais absolus moyens (pour la période 2008-2012) inférieurs ou égaux à 11% pour les régions « Pacific », « Atlantic », « Forest », « Desert », « Africa », « Mexico city » et « Calcutta ». De plus, les différences entre les colonnes totales de IASI et celles de MOPITT sont pour la plupart des régions inférieures aux écarts types des moyennes des colonnes totales de IASI. Cependant, pour les régions « Teheran », « Atlantic », « Desert » et en hiver pour les régions « Europe » et « USA », ces différences relatives sont significatives (elles sont supérieures à la variabilité

des colonnes totales de IASI). Au-dessus de la région « Atlantic », l'allure des profils IASI et MOPITT (en rapport de mélange) est significativement différente : les profils IASI montrent de forts rapports de mélange près de la surface alors que les plus forts rapports de mélange restitués par MOPITT se situent vers 300 hPa. Dans ce cas, et en l'absence de profils *in situ*, on ne sait pas qui a raison. Cependant, le biais moyen des colonnes totales est de 10.4%, montrant un bon accord entre les colonnes totales. Avec le nouveau produit MOPITT vX1, les biais diminuent dans certains cas (comme pour les régions « Europe » et « USA » en décembre-janvier) mais augmentent dans d'autres.

L'étude du nouveau produit MOPITT vX1, comparé aux produits MOPITT v5T et IASI nous a permis de mieux comprendre le poids des hypothèses *a priori* dans le processus d'inversion. Pour MOPITT, l'utilisation de profils *a priori* variables (basés sur une climatologie issue de simulations de modèle) permet de contraindre le profil inversé d'une manière très « réaliste » lors de l'inversion. La matrice S_a est construite de manière à ce que les concentrations mesurées à une altitude donnée ne soient pas redistribuées ou extrapolées vers d'autres altitudes. Pour IASI, le profil x_a et la matrice S_a fixes ont l'avantage de fonctionner à l'échelle globale, dans des situations de fond ou lors d'événements exceptionnels où des concentrations élevées de CO sont détectées. Cependant dans ces cas exceptionnels, il est difficile pour IASI de pouvoir déterminer l'altitude des panaches mesurés car il n'y a pratiquement aucune variabilité autorisée entre 5-10 km dans la matrice S_a (comme dans le cas étudié au-dessus de Seattle). Pour déterminer ces altitudes, il faudrait d'autres mesures de validation, mais ce n'est pas l'objet de cette étude qui étudie l'influence des hypothèses *a priori* choisies dans un processus d'inversion. Les restitutions de chacun des instruments sont contraintes par leur zone de sensibilité (vers 300-400 hPa, i.e. 7-9 km pour MOPITT, et vers 400-500 hPa, i.e. 6-7 km pour IASI). Quand un signal de CO est présent dans la mesure, ce sont les matrices S_a qui vont déterminer s'il y a une redistribution des concentrations vers les couches voisines, ou pas. Plus que le profil *a priori*, c'est le choix de la matrice de variance-covariance *a priori* qui influe sur l'allure des profils restitués.

Cette étude pourrait être complétée par la suite par une validation systématique avec des profils avions IAGOS ou autres, pour connaître l'altitude des panaches de pollution quand ils sont détectés, et comparer ces profils avec les restitutions de MOPITT et IASI. Il serait intéressant de faire des tests en inversant les données IASI avec un algorithme FORLI

modifié, qui utiliserait une matrice S_a qui laisse moins de variabilité à la surface et plus de variabilité dans la moyenne troposphère.

Conclusion et perspectives

Mon travail de thèse s'inscrit dans la lignée des travaux menés au LATMOS pour exploiter les données de la mission IASI/MetOp, en particulier sur le volet composition atmosphérique. Mes travaux ont surtout concerné le monoxyde de carbone (CO), un gaz important car il participe à la régulation de la capacité d'oxydation de l'atmosphère, il est un précurseur de l'ozone et un bon traceur de transport de la pollution. Grâce à des collaborations développées sur le long terme avec les équipes de l'ULB et du NCAR, nous avons pu mettre au point des outils innovants pour analyser le million d'observations fournies par IASI chaque jour et tirer des informations sur les distributions du CO. Les données ont été analysées spatialement et temporellement (étude des variabilités mensuelles sur les 6 années d'observations IASI disponibles et d'événements exceptionnels tels que les feux), et l'étude des erreurs et de l'information verticale disponible nous a permis de mieux comprendre les apports et les limitations des observations IASI. Un volet important de mon activité a été dédié à la validation (une publication et une autre en cours de rédaction), et à la préparation de jeux de données dédiés pour d'autres équipes de recherches (ces travaux ont conduit à 10 publications dont je suis co-auteur).

Mon travail de thèse a permis de valider l'algorithme d'inversion FORLI-CO, qui est maintenant utilisé par Eumetsat pour la fourniture des produits officiels CO IASI (distribution via EumetCast prévue à partir d'avril 2014). Pour étudier les concentrations mesurées nous avons analysé les distributions à l'échelle globale, et les concentrations de CO ont été présentées sous forme de moyennes mensuelles, pour tous les mois de janvier 2008 à décembre 2013. Nous avons choisi de nous intéresser particulièrement aux données de jour. En effet, en journée, le contraste thermique est plus élevé (au moins sur les continents) ce qui augmente la sensibilité de l'instrument IASI aux concentrations de CO dans les basses couches et qui rend les données de CO restituées plus complètes. Les distributions mensuelles et la coupe latitudinale nous montrent les zones d'émission du CO. Dans l'hémisphère nord, où se situent la majorité des villes, le CO d'origine anthropique est émis toute l'année par les industries, le chauffage domestique ou le trafic routier. Le CO émis par les feux de biomasse (pour le défrichage agricole ou provoqués par la foudre en fin de saison sèche) est visible

d'une part sur l'Afrique, entre novembre et avril dans l'hémisphère nord et entre juin et octobre dans l'hémisphère sud, et d'autre part en Amazonie entre août et décembre. Les feux naturels, liés à des températures estivales très élevées en Russie en 2010 et en Sibérie en 2012, ont émis de grandes quantités de CO dans l'atmosphère et les panaches ont pu être suivis par IASI. Cela est notamment possible grâce à la durée de vie du CO (1 à 2 mois).

Les erreurs relatives associées à l'inversion avec l'algorithme FORLI (10-15% pour les latitudes équatoriales et moyennes) et les DOFS (entre 1 et 2 généralement, avec les valeurs les plus élevées dans la bande intertropicale et les moyennes latitudes, le jour) démontrent que les données sont robustes et que la colonne totale contient généralement des informations provenant de deux couches de l'atmosphère (la basse et la haute troposphère).

A plus petite échelle, nous avons choisi d'analyser la variabilité des colonnes totales mesurées sur douze régions du globe, représentatives de situations géophysiques variées, de 2008 à 2013. Les valeurs les plus faibles sont observées au-dessus du Pacifique (1.2×10^{18} molécules/cm² en moyenne pour les six ans de l'étude), loin des continents et des activités humaines. Les valeurs les plus élevées sont relevées au-dessus de la Chine (2.9×10^{18} molécules/cm² en moyenne) et lors des périodes de feux, en Afrique ou en Amazonie. Des cycles saisonniers sont observés au-dessus des villes : les plus fortes concentrations sont mesurées au-dessus de Mexico city et de San Francisco entre janvier et juin. Il en est de même dans l'hémisphère nord pour les régions « Europe », « USA » et « Desert », avec un pic au mois de mars. En effet, le CO émis s'accumule dans l'atmosphère en hiver dans l'hémisphère nord, et est détruit par le radical OH au retour du soleil au printemps.

Les mesures FORLI-CO ont été validées avec des mesures venant d'instruments embarqués sur des satellites et des avions, ou encore avec des mesures faites à bord de ballons ou dans des stations sol faisant partie de réseaux de mesures. La validation des produits FORLI-CO avec les produits de MOPITT/Terra, AIRS/AQUA et TES/AURA, mesurant comme IASI dans la région spectrale de l'infrarouge thermique, fait partie de mes travaux de thèse et a été publiée en 2009 dans la revue ACP. Les produits FORLI-CO sont en bon accord avec les produits des trois autres instruments. Les concentrations fournies par MOPITT sont généralement plus élevées que celles fournies par IASI avec un biais moyen global de 9.6% (11.4% pour les latitudes comprises entre 45° et 90°). Les concentrations fournies par AIRS

sont elles aussi plus élevées que celles fournies par IASI pour les latitudes sud (entre -15° et -45°), avec un biais de 13.5%. En revanche, les concentrations fournies par TES, similaires à celles fournies par IASI, sont légèrement plus basses que celles de IASI, et ce pour toutes les latitudes. Les résultats des autres études de validation qui ont été publiés suite à cet article sont également présentés.

De nombreux scientifiques utilisent les données FORLI-CO IASI, et nos travaux ont permis entre autres :

- de mettre à disposition de tous les six années de données IASI CO via le Pôle Ether (88 utilisateurs inscrits en février 2014) ;
- d'étudier les émissions de CO liées aux feux qui ont eu lieu en Russie en juillet-août 2010. Le modèle TM5-4Dvar estime ces émissions à 24 Tg (Krol et al., 2013). Une autre étude qui assimile également les données FORLI-CO estime ces émissions à 39.6 Tg (Yurganov et al., 2011) ;
- de suivre les panaches de CO dus aux feux en Sibérie lors de la campagne de mesures ACCESS en juillet 2012 (Roiger et al., 2014) ;
- d'analyser les données FORLI-CO IASI et celles mesurées par d'autres instruments embarqués sur des satellites, pour établir une tendance de -1%/an des émissions dans l'hémisphère nord sur une période de 11 ans (Worden et al., 2013) ;
- d'établir quotidiennement des cartes de prévision de rapports de mélange de CO dans le cadre du projet ECMWF MACC (composante Atmosphère du programme Européen Copernicus), auquel le LATMOS fournit en quasi-temps réel les données FORLI-CO IASI pour assimilation dans ses modèles. Dans ce cadre, le biais négatif entre les simulations du modèle MOZART et les observations satellite, qui est connu dans l'hémisphère nord en hiver et au printemps, peut être expliqué soit par l'absence de certaines sources d'émissions, soit par une surestimation du puits du dépôt sec à la surface (Stein et al., 2014).

Enfin, la comparaison des produits CO de IASI et MOPITT, qui fait l'objet du dernier chapitre de ma thèse, nous montre que les deux produits sont en bon accord : les moyennes des valeurs absolues des différences entre les colonnes totales de CO de IASI et MOPITT (pour la période 2008-2012) sont inférieures ou égales à 11% pour les régions « Pacific », « Atlantic », « Forest », « Desert », « Africa », « Mexico city » et « Calcutta ». Pour de nombreuses régions, les différences relatives sont inférieures à la variabilité des colonnes

totales de IASI, ce qui démontre une bonne cohérence entre les produits CO IASI et MOPITT.

Afin d'étudier l'impact des hypothèses *a priori* sur la restitution des concentrations de CO à partir des observations IASI et MOPITT, nous avons construit un nouveau produit MOPITT vX1 en introduisant dans MOPFAS, le code de restitution des données MOPITT, les hypothèses *a priori* utilisées dans FORLI. Avec le nouveau produit MOPITT vX1, les biais entre les produits MOPITT et IASI diminuent dans certains cas (comme pour les régions « Europe » et « USA » en décembre-janvier) mais ce n'est pas le cas pour toutes les régions. Les restitutions de chacun des instruments sont affectées par leurs altitudes de sensibilité (vers 300-400 hPa, i.e. 7-9 km pour MOPITT, et vers 400-500 hPa, i.e. 6-7 km pour IASI). Quand un signal de CO est présent dans la mesure, ce sont les matrices S_a qui vont déterminer s'il y a une redistribution des concentrations vers les altitudes voisines, ou pas. Plus que le profil *a priori*, c'est le choix de la matrice de variance-covariance *a priori* qui influe sur les profils restitués.

Cette étude pourrait être complétée par une autre expérience qui consisterait à inverser les mesures IASI avec un algorithme FORLI modifié qui utiliserait une matrice S_a qui laisse moins de variabilité à la surface et plus de variabilité dans la moyenne troposphère. On peut supposer que les profils CO ainsi restitués montreraient des quantités moindres de CO à la surface. Mais qu'en serait-il dans la moyenne troposphère ? Les valeurs restituées entre 6 et 10 km seraient-elles plus élevées ? Et les colonnes totales seraient-elles significativement différentes ? Une validation systématique avec des profils avions IAGOS ou autres, nous permettrait de connaître l'altitude des panaches de pollution quand ils sont détectés, et d'évaluer ainsi les profils restitués de MOPITT et IASI.

Après le lancement de deux instruments IASI à bord des plate-formes MetOp-A et MetOp-B (en octobre 2006 et septembre 2012 respectivement), la mission IASI continue avec un troisième instrument dont le lancement est prévu à bord de MetOp-C en 2018. Cette mission promet donc un jeu homogène de données sur plus de quinze ans. Le futur de IASI est aussi assuré avec une nouvelle génération d'instruments héritiers de IASI (IASI-NG), dont les lancements sont prévus à partir de 2021 (trois instruments pour trois lancements successifs à bord de plate-formes MetOp-SG). Ce nouvel instrument permettra un gain notable dans la

qualité des profils verticaux de CO (précision, résolution verticale, sensibilité aux plus basses couches) grâce à une résolution spectrale et un rapport signal sur bruit améliorés (tous les deux) d'un facteur 2.

Annexe A Lissage d'un profil et comparaison de colonnes totales

Quelle est la différence entre

1) Lisser un profil en utilisant la matrice des fonctions de lissage puis calculer sa colonne totale

et

2) Lisser un profil en utilisant le vecteur correspondant à la colonne totale ?

Le vecteur des fonctions de lissage correspondant à la colonne totale est la somme des lignes de la matrice des fonctions de lissage. Il est notamment disponible avec les données FORLI-CO distribuées sur le site du pôle de compétences Ether (<http://www.pole-ether.fr>, cf. section 4.3).

Si on souhaite comparer les colonnes totales inversées à partir des observations de deux instruments de résolutions différentes, on doit lisser le profil haute résolution avec les fonctions de lissage de l'instrument basse résolution. Par exemple, si on souhaite comparer les données d'une station sol avec des données IASI, on lissera les données sol avec les fonctions de lissage IASI.

Pour obtenir une colonne totale lissée, on peut utiliser deux méthodes :

1) On utilise la matrice des fonctions de lissage \mathbf{A} en appliquant la formule :

$$\mathbf{x}_{\text{smoothed}}^{\text{high}} = \mathbf{A}^{\text{IASI}} \mathbf{x}_{\text{retrieved}}^{\text{high}} + (\mathbf{I} - \mathbf{A}^{\text{IASI}}) \mathbf{x}_a^{\text{IASI}}$$

avec $\mathbf{x}_{\text{retrieved}}^{\text{high}}$, le profil haute résolution à lisser (en molécules/cm²);

$\mathbf{x}_{\text{smoothed}}^{\text{high}}$, le profil haute résolution lissé ;

$\mathbf{A}^{\text{IASI}} = \begin{pmatrix} a_{1,1} & \cdots & a_{1,19} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{19,1} & \cdots & a_{19,19} \end{pmatrix}$, la matrice des fonctions de lissage IASI ;

et x_a^{IASI} , le profil IASI *a priori*.

On obtient alors le profil lissé qu'on intègre afin d'obtenir la colonne totale lissée.

2) On utilise le vecteur (ou la fonction de lissage) correspondant à la colonne totale k en appliquant la formule :

$$\sigma_{smoothed}^{high} = k^{IASI} x_{retrieved}^{high} + (i - k^{IASI}) x_a^{IASI}$$

avec $\sigma_{smoothed}^{high}$, la colonne totale lissée du profil haute résolution ;

$k^{IASI} = (k_1 \ k_2 \ \dots \ k_{19})$, tel que $k_i = a_{1,i} + a_{2,i} + \dots + a_{19,i}$, $i=1$ à 19, la fonction de lissage (vecteur) IASI correspondant à la colonne totale ;
 i , le vecteur unité (1 1 ... 1).

On obtient alors directement la colonne totale lissée.

Pour obtenir la colonne totale lissée, **ces deux méthodes sont équivalentes si :**

1) on travaille avec des profils en colonnes partielles (molécules/cm²) car la restitution est faite en colonnes partielles dans FORLI-CO et la matrice A est construite pour lisser des profils en colonnes partielles (Attention, on ne peut pas sommer des VMR !)

et

2) le profil à lisser « descend au moins aussi bas que le profil restitué à partir des mesures IASI ».

Pour illustration, quelques exemples comparés sont présentés sur la Figure A1. Figure A1(a), où le profil de la station sol (vert) descend aussi bas que le profil IASI, les colonnes CT_{mat} et CT_{vec} calculées par les deux méthodes sont les mêmes (la différence est nulle). Sur la Figure A1(b), le profil sol à lisser ne descend pas aussi bas que le profil IASI. Du fait de l'absence des premières centaines de mètres de l'atmosphère dans le profil haute résolution, alors que le profil IASI et le vecteur k associé vont pratiquement jusqu'à la surface, le calcul de la colonne

totale avec le vecteur k et le calcul avec la matrice ne sont pas les mêmes. La différence relative entre les deux estimations de la colonne totale est significativement non nulle.

Quand on extrapole le profil haute résolution (en vert) vers le bas (Fig. A1(d)), on obtient alors la même colonne totale lissée avec les deux méthodes ($CT_{mat}=CT_{vect}$).

Le profil haute résolution doit descendre au moins aussi bas que le profil IASI. Sur la Figure A1(c), il descend même plus bas.

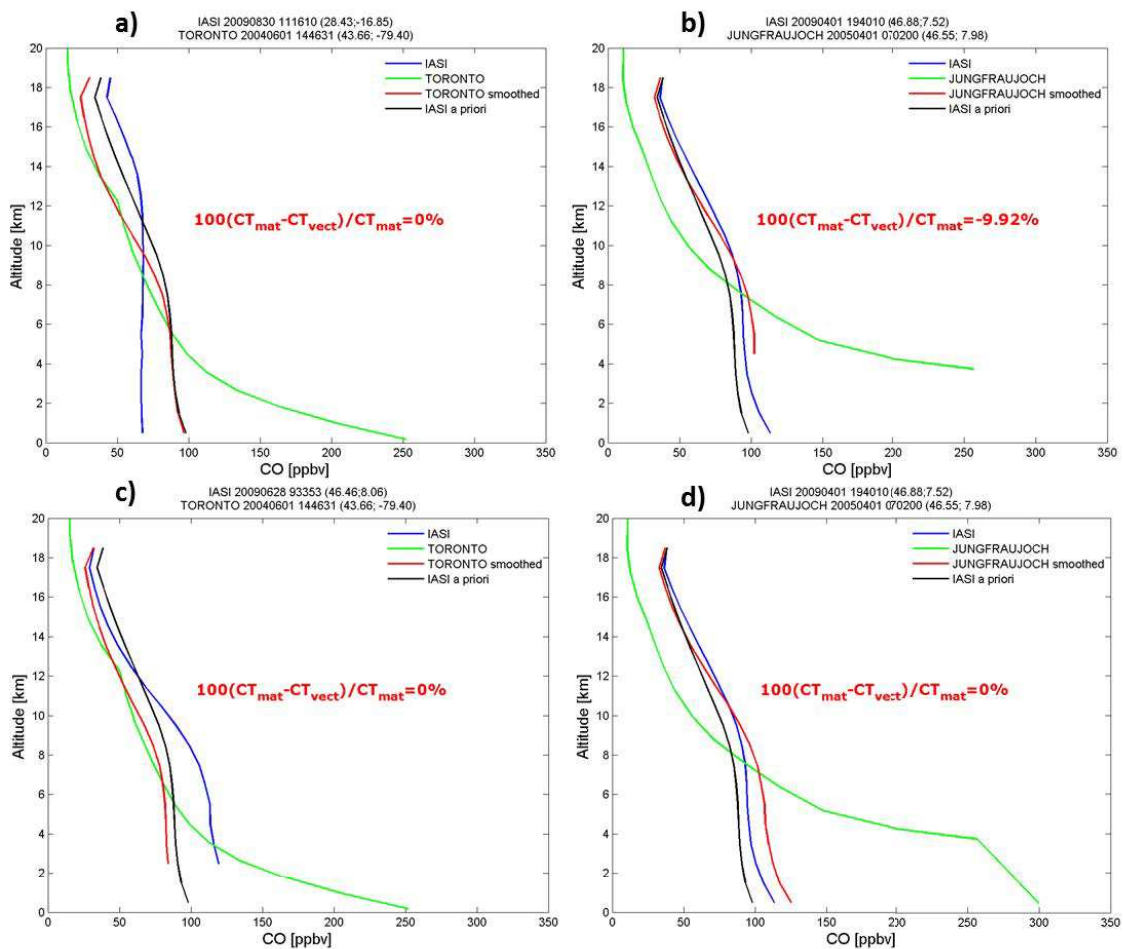


Fig. A1 - Différents exemples où des profils mesurés à des stations sol (en vert) sont lissés par les fonctions de lissage IASI (en rouge). Les profils inversés IASI sont représentés en bleu. Le profil *a priori* est représenté en noir. CT_{mat} est la colonne totale calculée avec la matrice A et CT_{vect} est la colonne calculée avec le vecteur k .

Annexe B Les méthodes de mesure du CO

Dans cette annexe nous allons présenter brièvement les différentes méthodes permettant de mesurer le CO. Le spectromètre à transformation de Fourier (comme IASI et ACE-FTS) est présenté dans l'annexe suivante.

La mesure de la concentration d'un gaz peut soit s'effectuer *in situ* par prélèvement puis analyse en laboratoire, soit grâce à un instrument qui effectue la mesure à distance. Dans le premier cas, l'air à étudier est capturé (dans un flacon) puis les concentrations des différents gaz qui le composent sont déterminées en laboratoire. Dans le deuxième cas, les instruments sont basés sur des stations sol, embarqués sur des ballons, des avions ou des satellites, et mesurent un rayonnement à partir duquel la concentration du gaz étudié est estimée par des outils de restitution.

Voici une liste des différentes méthodes qui permettent de mesurer le CO.

Les méthodes *in situ* :

- méthode électrochimique (piles)
- coulométrie
- réaction avec l'oxyde de mercure
- chromatographie

Les méthodes spectrométriques, qui permettent la mesure du CO à distance, par l'intermédiaire d'un rayonnement:

- * Spectromètre de masse
- * Spectromètre à diode laser
- * Analyseur à corrélation par filtres gazeux (IR ou UV)
- * Spectromètre à réseaux
- * Spectromètre à transformation de Fourier (présenté dans l'annexe suivante)
- * Radiomètre à corrélation de gaz

1 Méthode électrochimique (piles)

Le courant ou le potentiel de la pile donne une estimation de la concentration du gaz. Dans le cas du CO, une membrane semi perméable en Téflon laisse passer le CO. Le CO réagit sur une électrode couverte d'un catalyseur (sur une électrode auxiliaire l'oxygène moléculaire est réduit).

Electrode de travail : $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$

Electrode auxiliaire : $\frac{1}{2} \text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$

L'intensité du courant est proportionnelle à la concentration de CO.

2 Coulométrie

La concentration du CO est déterminée au moyen de la mesure d'une quantité d'électricité qui élimine complètement le CO au cours d'une réaction électrochimique du type :

oxydant + $n\text{e}^- \rightarrow$ réducteur

3 Réaction avec l'oxyde de mercure (méthode notamment utilisée pour analyser les prélèvements effectués sur les sites du réseau ESRL, cf. section 1.1.5.1)

Le CO réagit avec de l'oxyde de mercure (à une température de 210 °C) pour créer du CO₂ et de la vapeur de mercure, qui est à son tour analysée afin de déterminer la quantité de CO.

$\text{CO} + \text{HgO} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{Hg}$ (210°C)

4 Chromatographie en phase gazeuse (méthode notamment utilisée pour analyser les prélèvements effectués sur les sites du réseau ESRL, cf. section 1.1.5.1)

La chromatographie en phase gazeuse est une technique d'analyse permettant de séparer les différents constituants d'un mélange de gaz. Pour ce faire on utilise une colonne chromatographique, qui est, de façon simplifiée, un tube contenant une phase fixe (par exemple un liquide, on parlera alors de chromatographie gaz-liquide ou de partage). Dans ce tube on va faire passer un gaz vecteur dont la fonction est d'entraîner le gaz à analyser dont on introduit une certaine quantité en tête de colonne (Fig. B1(a)).

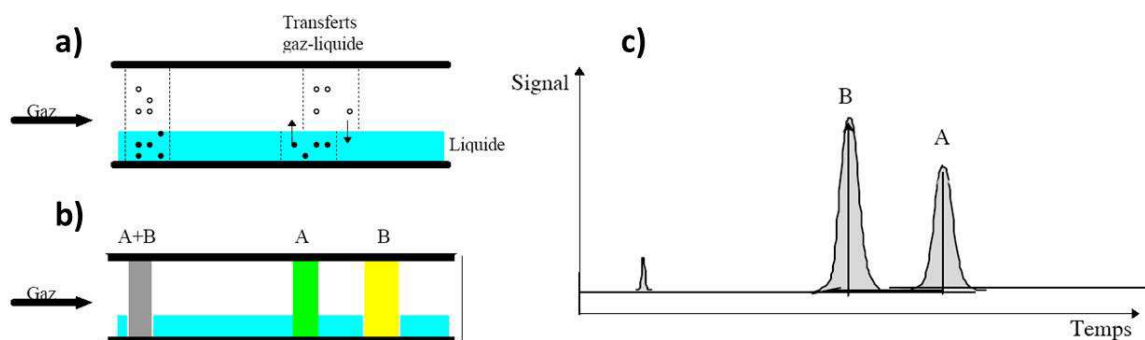


Fig. B1 - Principe d'une colonne de partage (a), séparation des solutés dans la colonne (b) et chromatogramme (c).

Les différents constituants du gaz vont alors passer en phase fixe et il va s'établir un équilibre entre les concentrations de ces constituants dans les deux phases. Les constantes des équilibres pour chacun des constituants étant différentes, ils vont se déplacer (car ils sont « poussés » par le gaz vecteur) à des vitesses différentes dans le tube (Fig. B1(b)).

Le chromatogramme obtenu (Fig. B1(c)) contient alors toutes les informations permettant de déterminer la nature et les proportions des différents constituants dans le mélange. Cette technique présente l'avantage de pouvoir séparer des mélanges même très complexes et de fournir des résultats avec une bonne précision.

5 Méthodes spectrométriques

5.1 Spectromètre de masse

L'agent physique extérieur est un agent ionisant. Dans presque tous les spectromètres de masse construits par l'industrie, cet agent ionisant est un faisceau d'électrons à énergie cinétique constante (Fig. B2). L'analyse est continue : après avoir réalisé une fragmentation constante et sous l'effet de deux agents physiques extérieurs notamment le champ magnétique, on obtient un spectre. En fonction de la position sur le spectre de chacun des signaux et des paramètres prédéterminés, il est possible de reconstituer la composition qualitative du gaz.

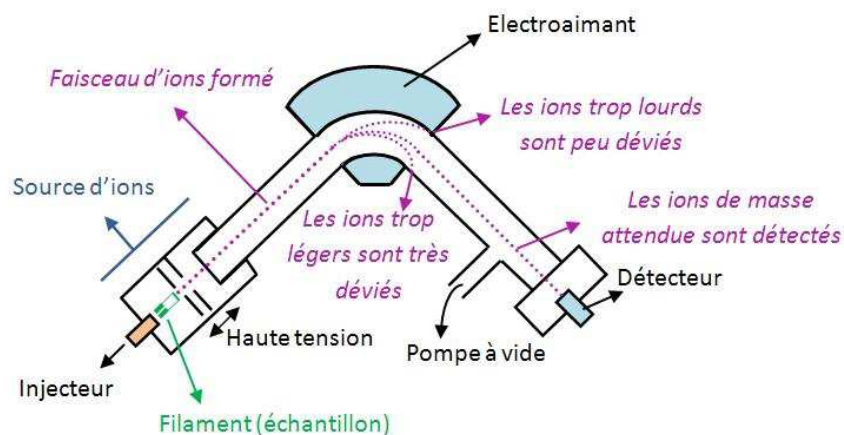


Fig. B2 - Schéma d'un spectromètre de masse. D'après le site web <http://acces.ens-lyon.fr/>.

5.2 Spectromètre à diode laser

Il s'agit d'un spectromètre doté d'une ou plusieurs diode(s) laser émettant un rayonnement. Ce rayonnement est en partie absorbé par les molécules qu'on cherche à mesurer.

Dans le cadre de l'expérience SPIRALE (SPectroscopie Infra-Rouge par Absorption de Lasers Embarqués), le spectromètre est doté de six diodes lasers accordables dédié à la mesure *in situ* de composés chimiques présents en traces dans la haute troposphère et dans la stratosphère, jusqu'à 35 km d'altitude. L'absorption des faisceaux lasers émettant dans l'infrarouge moyen a lieu dans une cellule de Herriott ouverte à l'air libre, entre deux miroirs distants de 3,5 m, d'où un très long parcours optique (jusqu'à 544 m). Les profils verticaux de concentrations d'une douzaine d'espèces - O₃, CH₄, CO, CO₂, N₂O, HNO₃, NO₂, NO, HCl, HOCl, H₂O₂, COF₂ - sont mesurés avec une très grande résolution verticale (quelques mètres), une grande sensibilité (rapports de mélange > 10 pptv) et une grande précision.

5.3 Analyseur à corrélation de gaz (IR ou UV), comme MAPS (section 1.2.1)

Cette méthode se différencie des méthodes classiques d'absorption IR ou UV par l'utilisation d'une seule chambre de mesure au lieu de deux (référence et échantillon). Le faisceau émis par la source IR ou UV est haché séquentiellement par un disque tournant (de corrélation) composé:

- d'un secteur opaque au rayonnement ;
- d'un secteur avec une cuve remplie du composé à analyser, à forte concentration ;

- d'un secteur avec une cuve remplie d'azote.

En fonction de la position du disque, le détecteur situé après la cuve de mesure voit successivement :

- un signal zéro ;
- un signal correspondant au faisceau émis par la source sans les radiations du composé à analyser, puis absorbé par les autres composés présents dans la chambre de mesure ;
- un signal correspondant au faisceau absorbé par les composés présents dans la chambre de mesure.

Cette méthode est souvent appelée GFC (Gas Filter Correlation) ; elle permet de corriger la réponse de l'appareil des absorptions parasites liées aux impuretés des cuves, voire même de la présence de particules sur le trajet optique et surtout des interférences spectrales comme celles provoquées par la vapeur d'eau.

5.4 Spectromètre à réseaux (IR)

Les réseaux sont connus sous le terme de réseaux de diffraction. Bien que la diffraction de la lumière par chaque trait d'un réseau joue un rôle essentiel en rayonnant dans toutes les directions, c'est le phénomène d'interférence entre les ondes diffractées par les nombreux traits du réseau qui lui donne ses caractéristiques de disperseur. Les caractéristiques d'un réseau de dispersion sont :

- sa période ou pas p et le nombre de traits par unité de longueur $n = 1/p$,
- la largeur a du motif élémentaire,
- la largeur L de la portion du réseau éclairé par le faisceau incident.

On considère une onde plane monochromatique incidente sur un réseau de diffraction avec un angle θ_0 par rapport à la normale au réseau. Chaque fente diffracte la lumière, et à la sortie du réseau il y a interférence entre les faisceaux diffractés par chaque fente. Un capteur est placé dans le plan focal d'une lentille à la sortie du réseau. La différence de marche δ entre les ondes (1) et (2) (Fig. B3) dans la direction θ_0 à la sortie du réseau s'écrit :

$$\delta = OH - MH_0 = p(\sin \theta - \sin \theta_0) = N\lambda$$

où λ est la longueur d'onde et N représente l'ordre d'interférence.

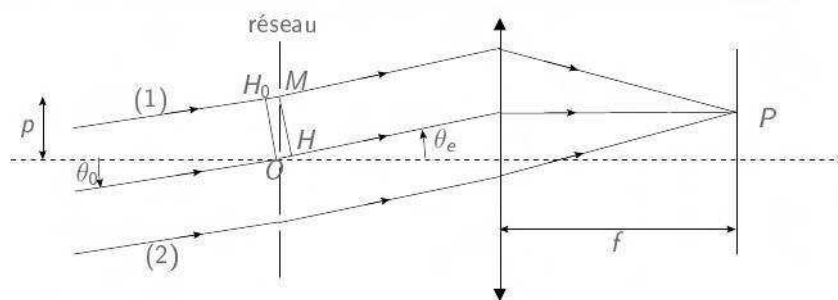


Fig. B3 - Schéma optique d'un spectromètre à réseaux

5.5 Radiomètre à corrélation de gaz et à modulation de pression (IR), comme MOPITT (section 1.2.3)

Le faisceau IR traverse deux cuves en parallèle, dont l'une est remplie par le mélange à analyser et l'autre remplie par un gaz de référence. Les deux faisceaux inégalement absorbés sont détectés et envoyés vers un convertisseur analogique digital qui génère un signal différentiel (après égalisation des gains de chaque voie). Le dispositif agit comme un filtre sélectif de l'espèce cible (gaz qu'il contient) et les caractéristiques de ce filtre peuvent être « modulées » soit par variation de la pression dans la cellule soit en faisant passer le faisceau issu de la scène atmosphérique dans des cellules de pression ou de longueur différentes (qui contiennent toujours le gaz cible).

L'instrument MOPITT est basé sur ce principe (Fig. B4), utilisant deux types de compartiments : PMCs (Pressure Modulator Cells) et LMCs (Length Modulator Cells) (Wang et al., 1999).

A la différence d'un spectromètre, la mesure d'un radiomètre est une valeur intégrée sur un domaine spectral. On ne peut donc pas tracer de spectre MOPITT comme on trace un spectre mesuré par IASI (luminance en fonction du nombre d'onde).

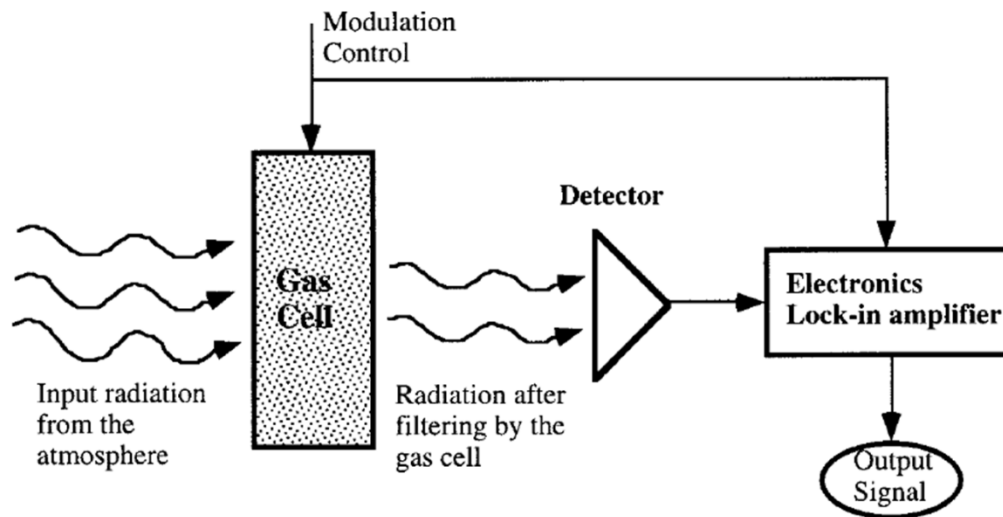


Fig. B4 - Schéma de fonctionnement d'un radiomètre à corrélation de gaz. Le compartiment contenant le gaz de référence (Gas cell) filtre les radiations de l'atmosphère. D'après Wang et al. (1999).

Annexe C Le spectromètre à transformation de Fourier

Le spectromètre à transformation de Fourier (FTS), comme les instruments IASI et ACE-FTS :

Le spectromètre à transformation de Fourier (FTS en anglais) est basé sur le principe de l'interféromètre de Michelson (Fig. C1). Le rayonnement incident émis par la surface de la Terre et les différentes couches atmosphériques est partagé par une lame séparatrice semi-réfléchissante en deux faisceaux. Un des faisceaux est dévié vers un miroir fixe et l'autre vers un miroir mobile et suit donc un trajet de longueur variable. L'écart de parcours optique entre les deux trajets δ est appelé différence de marche ou différence de chemin optique (OPD pour Optical Path Difference). L'énergie des deux faisceaux, lorsqu'ils se recombinent sur le détecteur, varie avec la différence de chemin optique. Elle est maximale quand la différence de chemin optique est un multiple de la longueur d'onde (l'inverse du nombre d'onde), c'est-à-dire quand les faisceaux sont en phase. Elle sera nulle lorsque les faisceaux sont en opposition de phase, c'est-à-dire lorsque la différence de chemin optique est un multiple impair de la demi-longueur d'onde du faisceau. Cette variation d'éclairement (ou d'intensité du rayonnement) sur le détecteur, en fonction de la différence de chemin optique, produit un signal appelé interférogramme $I(\delta)$.

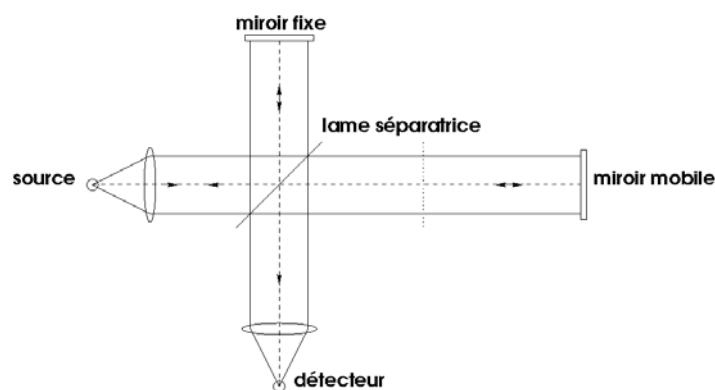


Fig. C1 - Schéma d'un interféromètre de Michelson.

Dans le cas d'un rayonnement ayant un spectre continu, l'interférogramme est donné par :

$$I(\delta) = \int_0^{+\infty} B(\tilde{\nu}) (\cos 2\pi\tilde{\nu}\delta) d\tilde{\nu} \quad \text{Eq. C1}$$

Sachant que la transformée de Fourier (TF) de la fonction B s'écrit :

$$TF[B](\tilde{\nu}) = \int_{-\infty}^{+\infty} B(\tilde{\nu}) e^{(-2i\pi\tilde{\nu}\delta)} d\tilde{\nu} = \int_{-\infty}^{+\infty} B(\tilde{\nu}) (\cos(2\pi\tilde{\nu}\delta) - i \sin(2\pi\tilde{\nu}\delta)) d\tilde{\nu} \quad \text{Eq. C2}$$

on peut considérer $I(\delta)$ comme la partie réelle de $TF[B]$.

Le FTS procède donc en deux temps : l'interférogramme est d'abord enregistré en fonction de δ , puis sa transformée de Fourier inverse restitue le spectre en fonction de $\tilde{\nu}$.

$$B(\tilde{\nu}) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\delta) \cos(2\pi\tilde{\nu}\delta) d\delta \quad \text{Eq. C3}$$

En pratique, le miroir mobile se déplace entre les positions $-L/2$ et $L/2$ et la différence de chemin optique est comprise entre $-L$ et L . La différence maximale de chemin optique est donc L . On ne mesure donc pas l'interférogramme $I(\delta)$ mais son produit par une fonction rectangle de largeur $2L$:

$$\Pi_{2L}(\delta) = 1 \text{ pour } -L \leq \delta \leq +L \quad \text{Eq. C4}$$

$$\Pi_{2L}(\delta) = 0 \text{ sinon.}$$

$$\text{On a donc } I_{\text{mesuré}}(\delta) = I(\delta) \Pi_{2L}(\delta) \quad \text{Eq. C5}$$

$$\text{Sachant que } TF[\Pi_{2L}](\tilde{\nu}) = 2L \text{ sinc}(\pi 2L \tilde{\nu}) \text{ où } \text{sinc}(\pi 2L \tilde{\nu}) = \frac{\sin(\pi 2L \tilde{\nu})}{(\pi 2L \tilde{\nu})} \quad \text{Eq. C6}$$

on obtient donc le spectre mesuré en convoluant (C3) par cette TF :

$$B_{mesuré}(\tilde{\nu}) = B(\tilde{\nu}) * 2L \operatorname{sinc}(\pi 2L \tilde{\nu}) \quad \text{Eq. C7}$$

La fonction $\operatorname{sinc}(\pi 2L \tilde{\nu})$ dite fonction d'appareil ou fonction instrumentale est tracée sur la Fig. C2. La largeur à mi-hauteur (FWHM pour « Full Width at Half Maximum ») du lobe principal est donnée par $1.207 \times \frac{1}{2L}$ mais $\Delta \tilde{\nu} = \frac{1}{L}$ est généralement accepté comme représentant la résolution spectrale. Le spectre résultant sera échantillonné d'un pas $\frac{1}{2L}$.

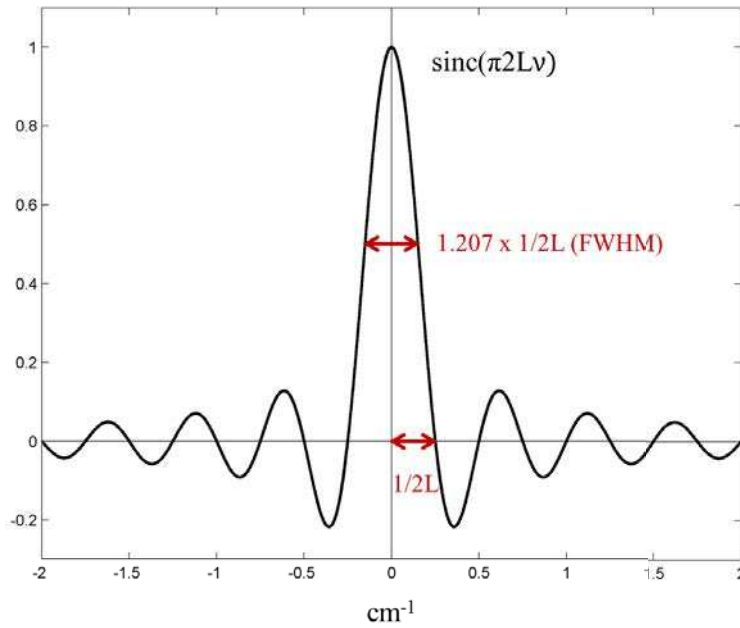


Fig. C2 - Allure de la fonction sinus cardinal pour un interféromètre théorique dont la différence de marche maximum (L) est de 2 cm (comme IASI).

En pratique, afin d'estomper les déformations du signal dues aux lobes secondaires de la fonction sinc, les spectres sont convolués par une fonction de poids $w(\delta)$ qui tend vers 0 lorsque δ atteint la différence de chemin optique maximale (L). L'application de cette fonction de poids, dite fonction d'apodisation, a l'inconvénient de dégrader la résolution spectrale de l'instrument. Le choix de cette fonction d'apodisation résulte d'un compromis entre la diminution des oscillations dues à la fonction d'appareil et la conservation de la résolution spectrale.

La différence de chemin optique est déterminée par différents facteurs, en particulier la résolution spectrale souhaitée par rapport au but spécifique de la mission.

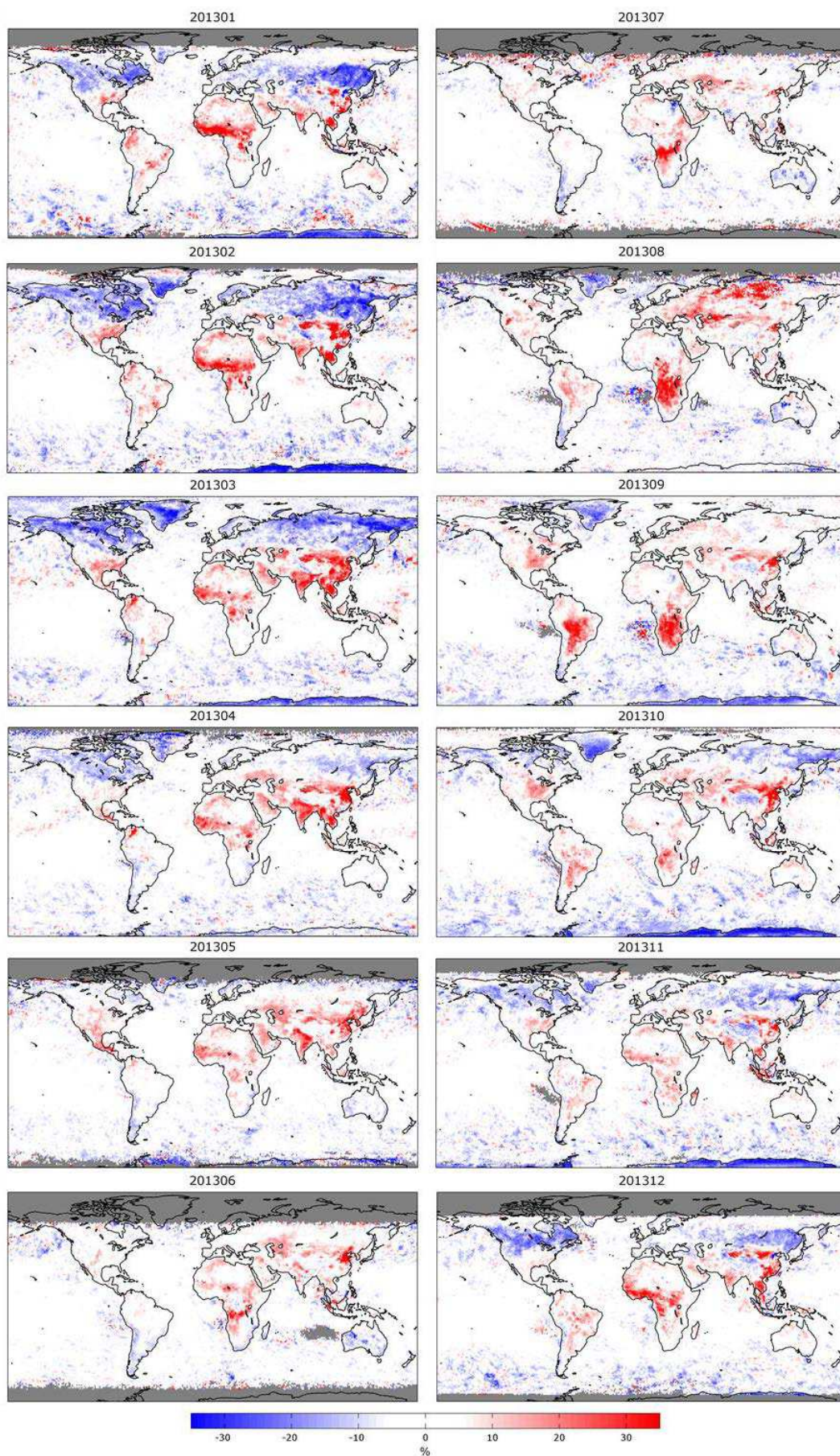
Le spectromètre ACE-FTS est caractérisé par une résolution spectrale très fine : 0.02 cm^{-1} , correspondant à une différence maximale de chemin optique (L) de 25 cm.

Dans le cas de IASI, la résolution spectrale est de 0.5 cm^{-1} . La différence maximale de chemin optique choisie (L) est de 2 cm, et le spectre est échantillonné avec un pas de 0.25 cm^{-1} . La fonction d'apodisation est une gaussienne de largeur 0.5 cm^{-1} .

Annexe D Différences jour/nuit mensuelles 2013

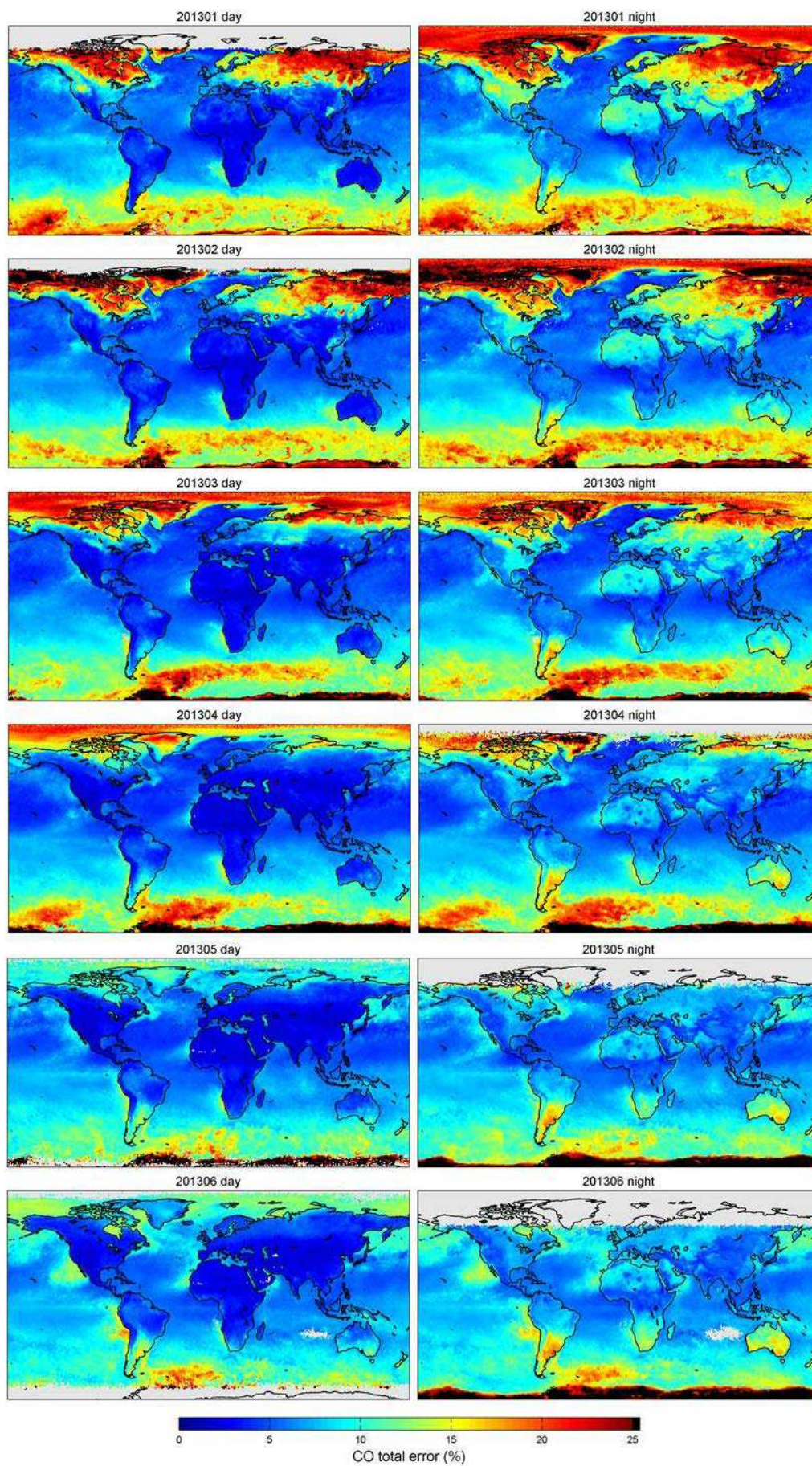
Les cartes suivantes représentent les différences relatives jour - nuit :

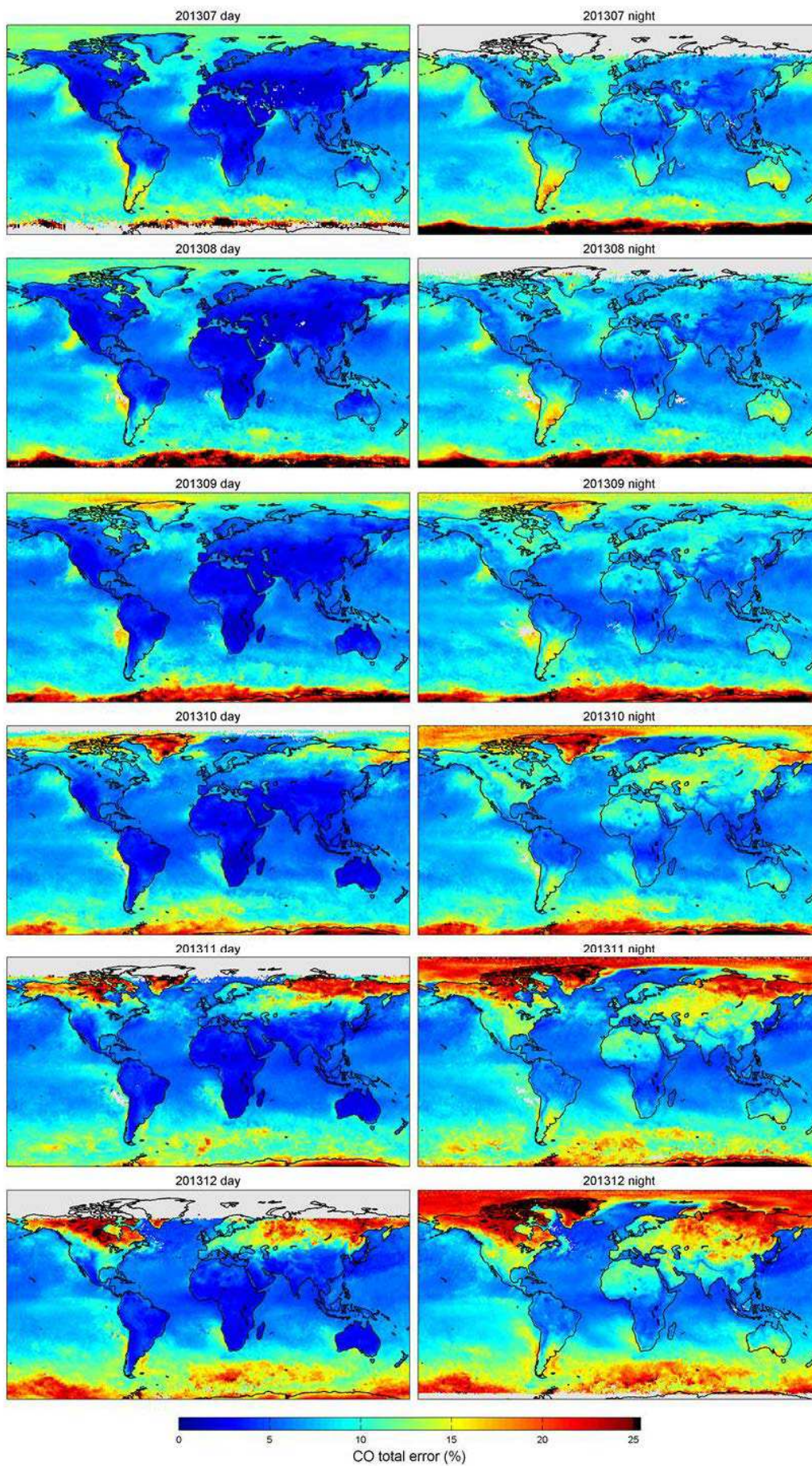
$100 * (\text{JOUR} - \text{NUIT}) / \text{NUIT}$, pour chacun des mois de 2013 :



Annexe E Erreurs totales mensuelles 2013

Les cartes suivantes représentent les erreurs totales (en %), moyennées pour chacun des mois de 2013, pour les données de jour (à gauche) et de nuit (à droite) :





Annexe F Le contraste thermique

1 La notion de contraste thermique

Pour les instruments satellitaires visant au nadir et utilisant le domaine spectral de l'infrarouge thermique, le contraste thermique à la surface de la Terre est un paramètre critique pour les observations des gaz traces troposphériques, notamment dans les basses couches. Le contraste entre la température de la surface et celle de la première couche de l'atmosphère immédiatement au-dessus de la surface détermine la capacité de l'instrument à détecter les concentrations de ces gaz. En effet ce contraste thermique détermine la forme moyenne des fonctions de lissage et si la mesure contient des informations dans la couche limite³² ou pas (i.e. Deeter et al., 2007).

Le matin, la terre (plus que la mer) commence à absorber le rayonnement solaire ultra-violet dans une région spectrale pour laquelle l'atmosphère est relativement transparente. Cela signifie que l'absorption ou l'émission par les molécules atmosphériques est alors négligeable. Ensuite la surface se réchauffe et réémet un rayonnement IR vers l'atmosphère. Au coucher du Soleil, la terre continue de réémettre et se refroidit, à un rythme qui dépend fortement du type de surface et de l'altitude. Généralement, la surface terrestre se réchauffe et se refroidit plus vite que l'atmosphère. Ainsi, durant ce processus, les variations diurnes du contraste thermique peuvent être différentes d'un endroit à l'autre. En règle générale, le contraste thermique est plus marqué pendant la journée que la nuit, et au-dessus des continents qu'au-dessus des océans.

2 Le contraste thermique des observations IASI

La Figure F1 montre la répartition du contraste thermique (ΔT) à partir des observations IASI pour mai 2008. La température de surface est la température de brillance à la surface dérivée des luminances IASI, et T est la température du premier niveau dans le profil de température

³² Couche directement soumise à l'influence de la surface de la Terre. Cette couche d'atmosphère est comprise entre la surface et 1.5 km d'altitude en moyenne.

(lorsque celui-ci est restitué à partir de l'analyse des bandes de CO₂). Notons que ces deux paramètres sont restitués indépendamment (Clerbaux et al., 2009). On note que le contraste thermique (sur la carte de jour) est limité (ΔT proche de zéro – couleur blanche) au-dessus de certaines zones en Arctique comme le nord du Canada, de la Scandinavie, au-dessus du Groenland ou même en Sibérie.

La différence jour/nuit, conséquence directe du chauffage de la surface associée à l'absorption du rayonnement solaire, évoquée précédemment, est parfaitement illustrée sur cette figure. On voit aussi que le contraste thermique est plus élevé pendant le jour que pendant la nuit sur la terre, et est habituellement plus fort sur terre que sur mer. Ces processus sont amplifiés au-dessus de la terre par le fait que la surface de la Terre a une inertie thermique limitée et donc se réchauffe et se refroidit plus vite que l'atmosphère, provoquant des variations de température de surface de plus grande amplitude au-dessus des continents. Localement, la température de surface est aussi modulée par la végétation et l'humidité du sol, par des processus d'évapotranspiration et d'évaporation. Par conséquent, les régions sèches et les régions où la végétation est clairsemée, offrent généralement des températures de surface plus élevées de jour que des régions à végétation dense. Au-dessus des mers, les variations diurnes de la température de surface sont limitées en raison de la plus grande inertie thermique de l'eau de mer. L'air immédiatement au-dessus de la surface se réchauffe au contact de cette surface (pas de réchauffement par le rayonnement solaire). Il se réchauffe plus lentement que les continents et plus vite que la surface océanique. Il y a donc un contraste thermique plus fort au-dessus des terres que des océans.

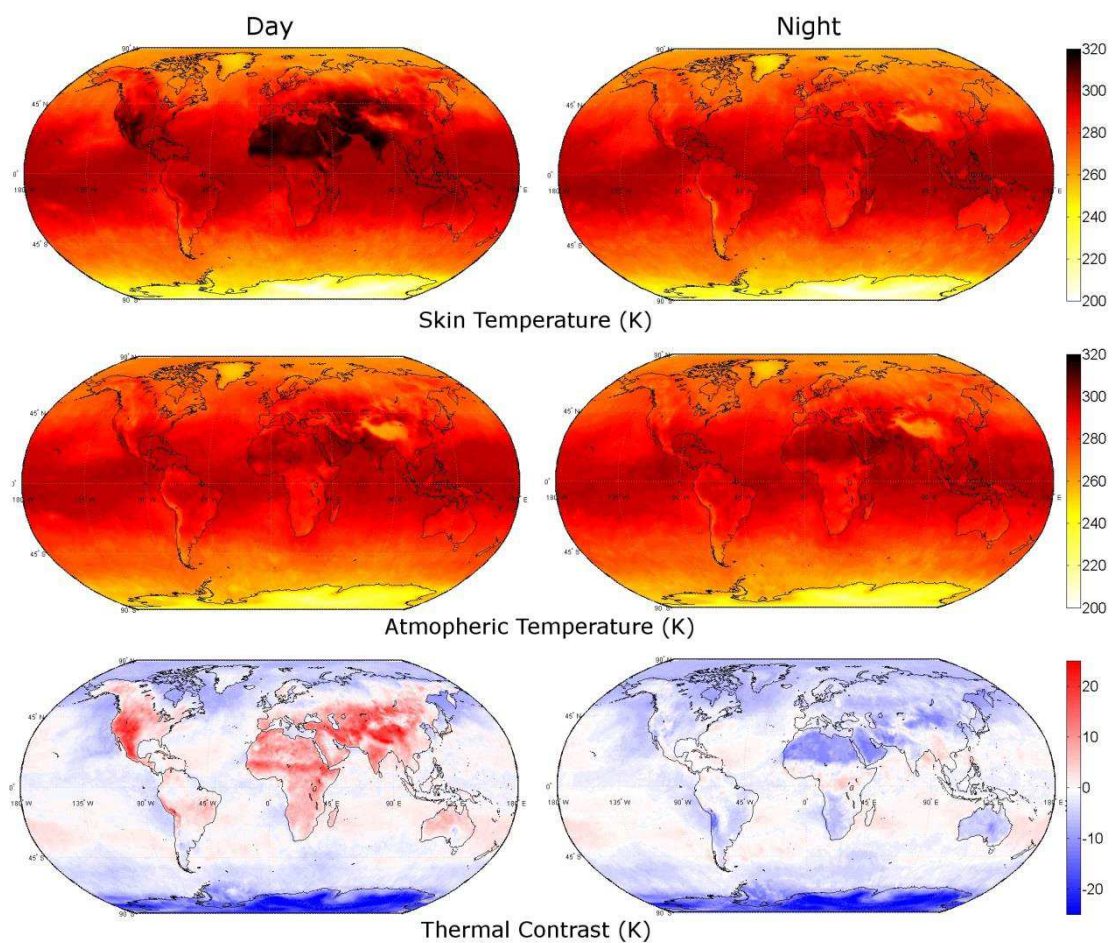
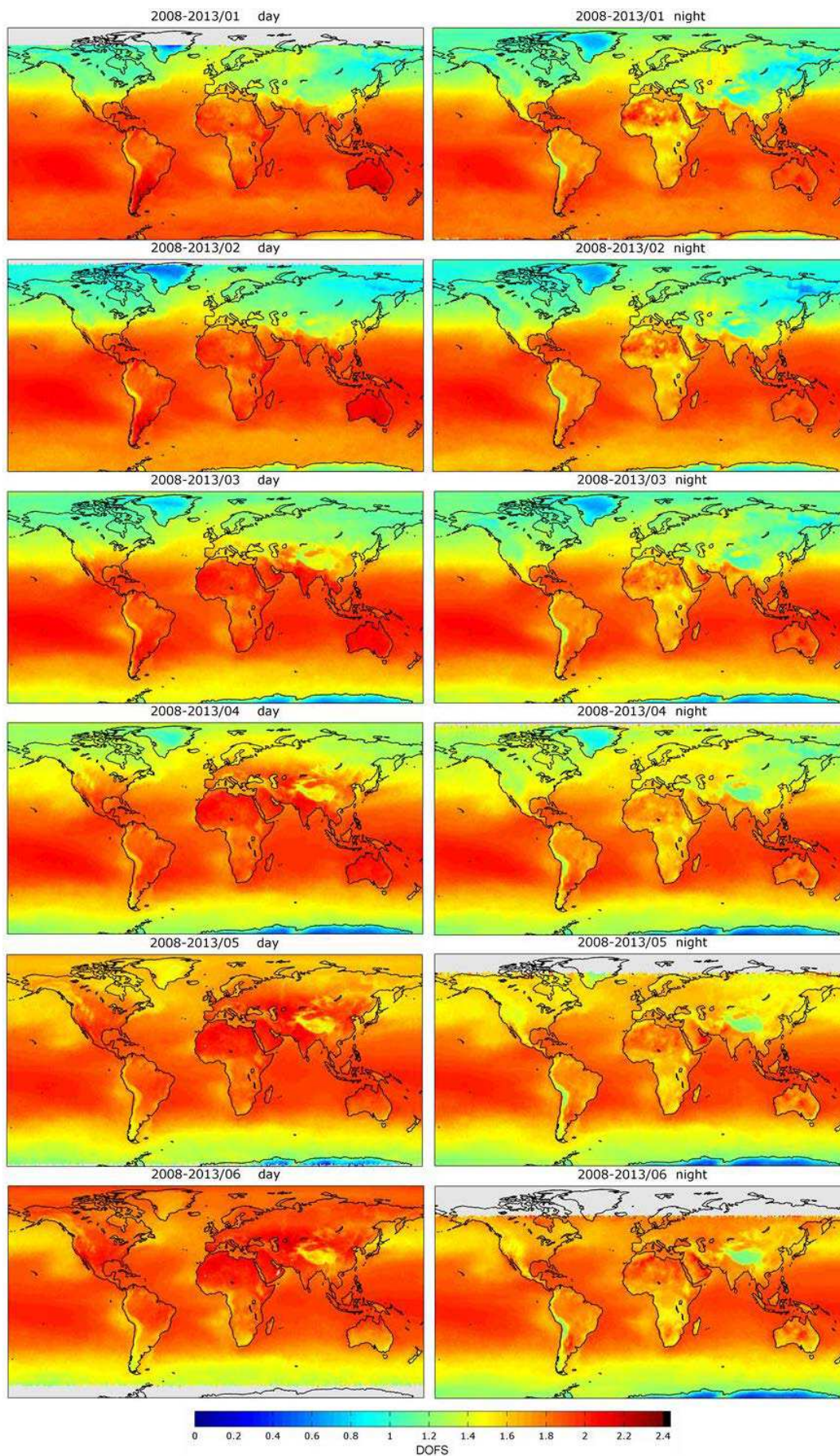
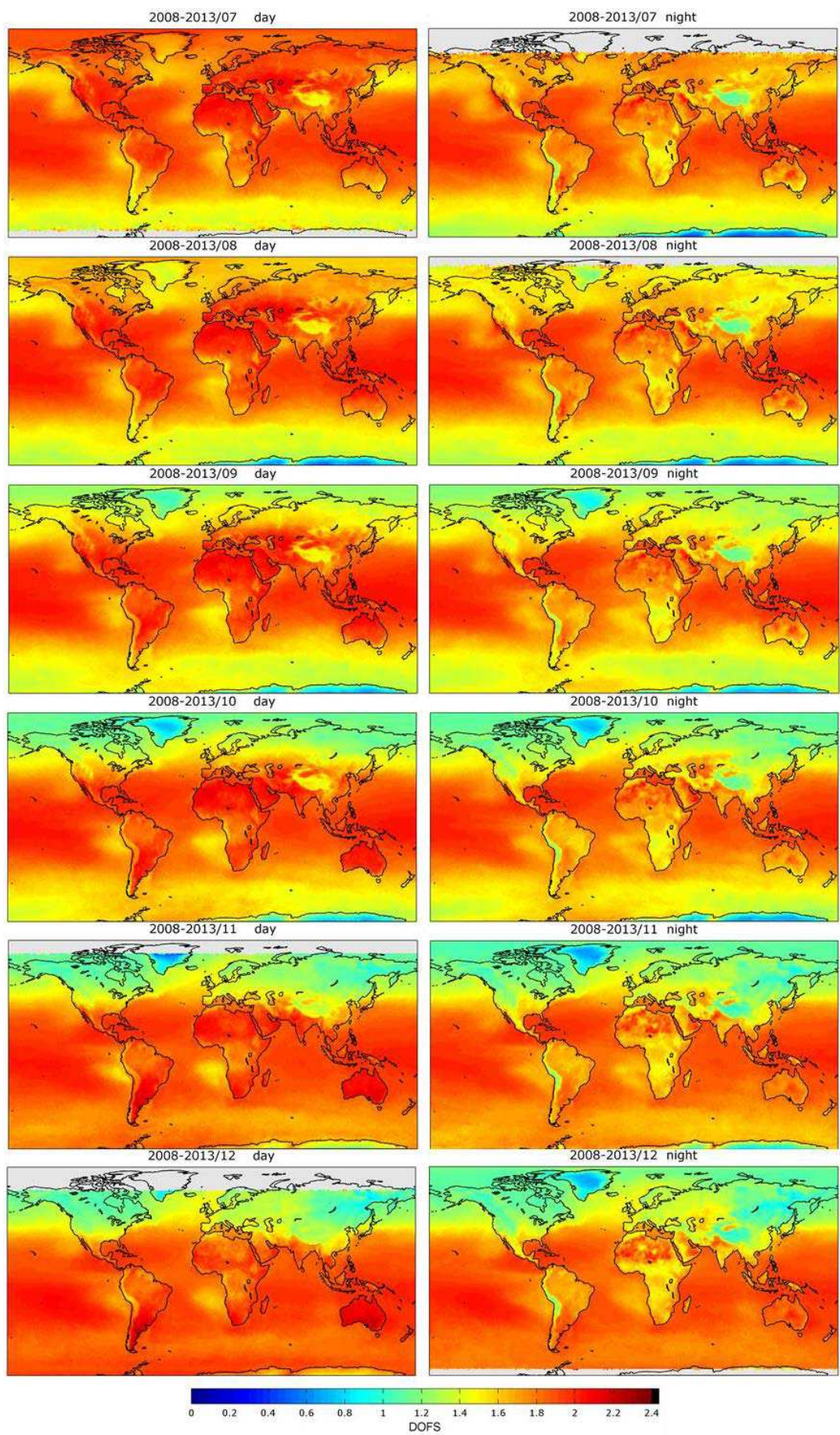


Fig. F1 - Les figures du haut et du milieu représentent les températures de surface et celles de la couche atmosphérique immédiatement au-dessus de la surface, provenant des produits niveau 2 d'Eumetsat, pour des observations de jour (à gauche) et de nuit (à droite), moyennées pour mai 2008. Les cartes du bas représentent la différence entre ces températures moyennées (contraste thermique) (d'après Clerbaux et al. (2009)).

Annexe G DOFS moyens

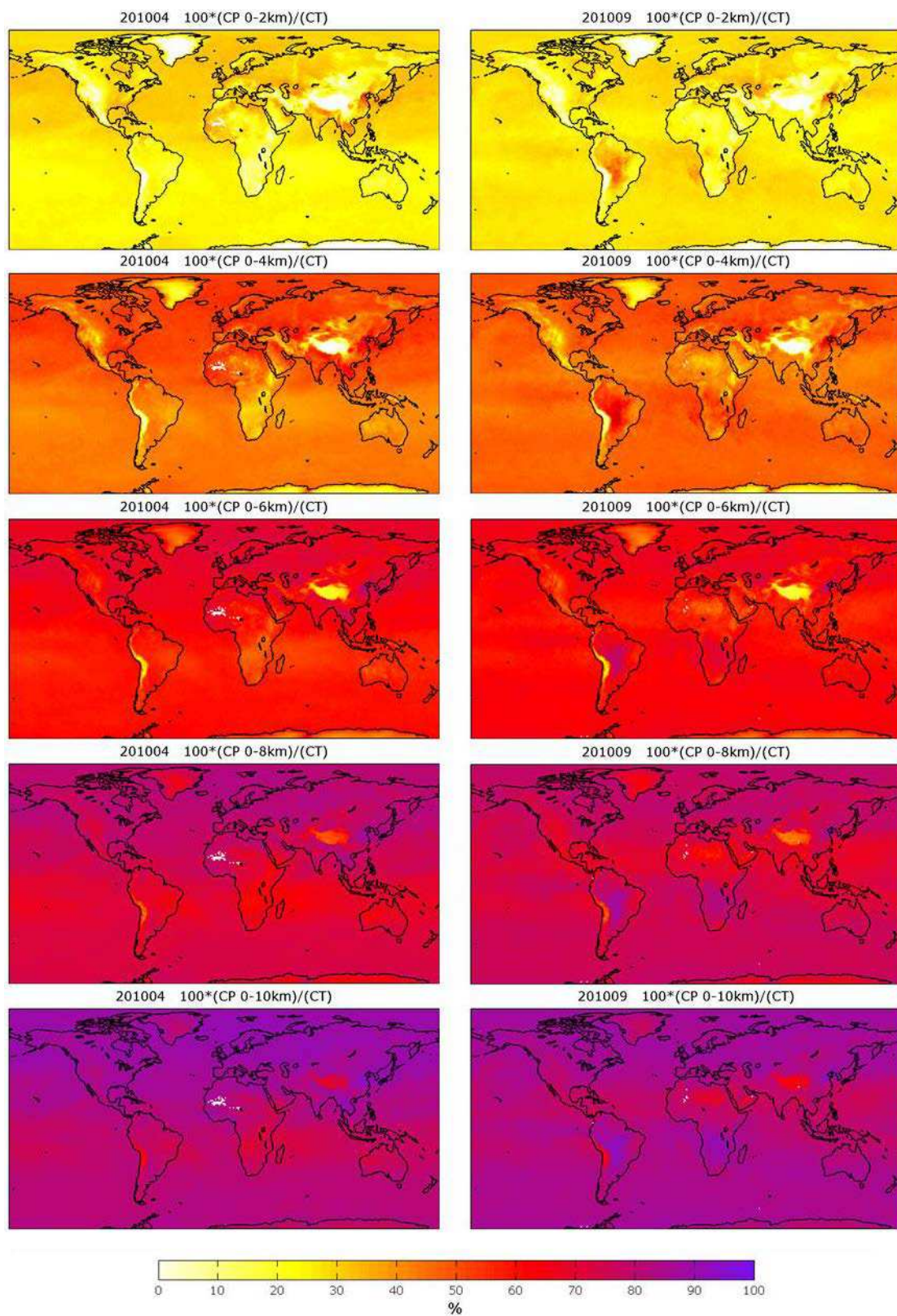
Les cartes suivantes représentent les DOFS jour et nuit, moyennés pour chaque mois sur les 6 ans IASI : de 2008 à 2013.

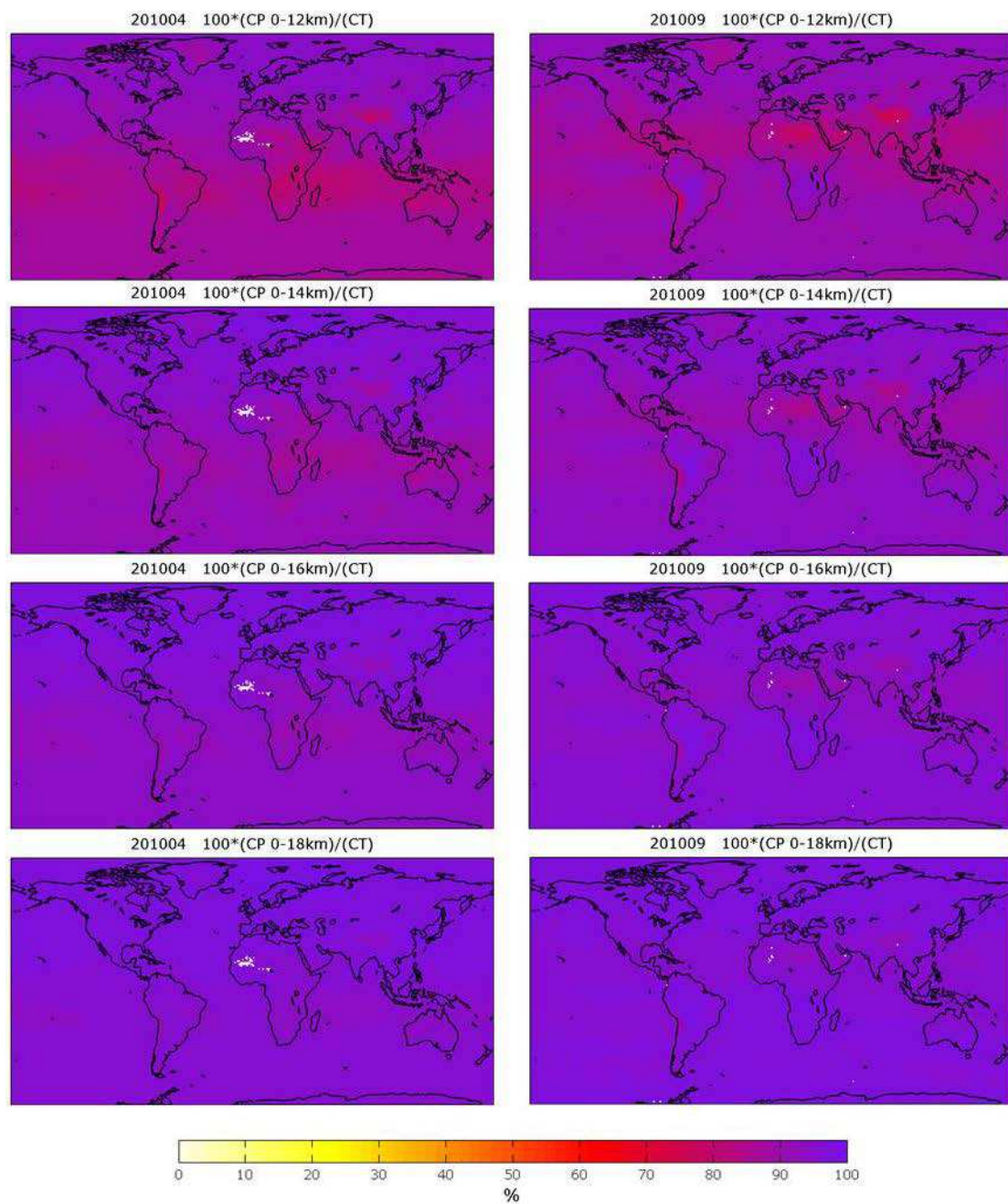




Annexe H Ratios colonne partielle/colonne totale

Rapport colonne partielle/colonne totale x 100, pour les mois d'avril (à gauche) et septembre 2010 (à droite). Les colonnes partielles sont les colonnes 0-2 km, 0-4 km, 0-6 km, 0-8 km, 0-10 km, 0-12 km, 0-14 km, 0-16 km et 0-18 km.





Bibliographie

- Anton, M., Loyola, D., Clerbaux, C., Lopez, M., Vilaplana, J. M., Banon, M., Hadji-Lazaro, J., Valks, P., Hao, N., Zimmer, W., Coheur, P. F., Hurtmans, D., and Alados-Arboledas, L.: Validation of the MetOp-A total ozone data from GOME-2 and IASI using reference ground-based measurements at the Iberian Peninsula, *Remote Sens. Environ.*, 115, 1380–1386, 2011.
- August, T., Klaes, D., Schlüssel, P., Hultberg, T., Crapeau, M., Arriaga, A., O’Carroll, A., Coppens, D., Munro, R., and Calbet, X.: IASI on Metop-A: operational level 2 retrievals after five years in orbit, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 113, 1340–1371, doi:10.1016/j.jqsrt.2012.02.028, 2012.
- Aumann, H. H., Chahine, M. T., Gautier, C., Goldberg, M. D., Kalnay, E., McMillin, L. M., Revercomb, H., Rosenkranz, P. W., Smith, W. L., Staelin, D. H., Strow, L. L., and Susskind, J.: AIRS/AMSU/HSB on the Aqua mission: Design, science objectives, data products, and processing systems, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 41, 2, 253–264, 2003.
- Badr, O., and Probert, S. D.: Sinks and environmental impacts for atmospheric carbon monoxide, *Appl. Energy*, 50, 339–372, 1995.
- Barret, B., Turquety, S., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Bey, I., Auvray, M., and Coheur, P.-F.: Global carbon monoxide vertical distributions from spaceborne high-resolution FTIR nadir measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2901–2914, doi:10.5194/acp-5-2901-2005, 2005.
- Beer, R., TES on the AURA Mission: Scientific Objectives, Measurements and Analysis Overview, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing*, 44, 1102–1105, 2006.
- Bernath, P. F., McElroy, C. T., Abrams, M. C., Boone, C. D., Butler, M., Camy-Peyret, C., Carleer, M., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Colin, R., DeCola, P., De Maziere, M., Drummond, J. R., Dufour, D., Evans, W. F. J., Fast, H., Fussen, D., Gilbert, K., Jennings, D. E., Llewellyn, E. J., Lowe, R. P., Mahieu, E., McConnell, J. C., McHugh, M., McLeod, S. D., Michaud, R., Midwinter, C., Nassar, R., Nichitui, F., Nowlan, C., Rinsland, C. P., Rochon, Y. J., Rowlands, N., Semeniuk, K., Simon, P., Skelton, R., Sloan, J. J., Soucy, M. A., Strong, K., Tremblay, P., Turnbull, D., Walker, K. A., Walkty, I., Wardle, D. A., Wehrle, V., Zander, R., and Zou, J.: Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): Mission overview, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L15S01, doi:10.1029/2005GL022386, 2005.
- Boichu, M., Menut, L., Khvorostyanov, D., Clarisse, L., Clerbaux, C., Turquety, S., and Coheur, P.-F.: Inverting for volcanic SO₂ flux at high temporal resolution using spaceborne plume imagery and chemistry-transport modelling: the 2010 Eyjafjallajökull eruption case study, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8569–8584, doi:10.5194/acp-13-8569-2013, 2013.
- Boone, C. D., Nassar, R., Walker, K. A., Rochon, Y., McLeod, S. D., Rinsland, C. P., and Bernath, P. F.: Retrievals for the atmospheric chemistry experiment Fourier-transform spectrometer, *Appl. Opt.*, 44, 7218–7218, 2005.
- Boynard, A., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Turquety, S., George, M., Hadji-Lazaro, J., Keim, C., and Meyer-Arnek, J.: Measurements of total and tropospheric ozone from IASI: comparison with correlative satellite, ground-based and ozonesonde observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6255–6271, doi:10.5194/acp-9-6255-2009, 2009.

- Brasseur, G., and Solomon, S.: *Aeronomy of the Middle Atmosphere: Chemistry and Physics of the Stratosphere and Mesosphere*, Atmospheric and Oceanographic Sciences Library, Springer, 2005.
- Brenot, H., Theys, N., Clarisse, L., van Geffen, J., van Gent, J., Van Roozendaal, M., van der A, R., Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Valks, P., Hedelt, P., Prata, F., Rasson, O., Sievers, K., and Zehner, C.: Support to Aviation Control Service (SACS): an online service for near real-time satellite monitoring of volcanic plumes, *Nat. Hazards Earth Syst. Sci. Discuss.*, 1, 5935-6000, doi:10.5194/nhessd-1-5935-2013, 2013.
- Campion, R., Salerno, G. G., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Clarisse, L., Kazahaya, K., Burton, M., Caltabiano, T., Clerbaux, C., and Bernard, A.: Measuring volcanic degassing of SO₂ in the lower troposphere with ASTER band ratios, *J. Volcanol. Geoth. Res.*, 194, 42–54, doi:10.1016/j.jvolgeores.2010.04.010, 2010.
- Camy-Peyret, C., and Eyre, J.: *IASI Science Plan*, 1998.
- Clarisse, L., Clerbaux, C., Dentener, F., Hurtmans, D., and Coheur, P. F.: Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations, *Nature Geosci.*, 2, 479–483, doi:10.1038/ngeo551, 2009.
- Clarisse, L., Shephard, M. W., Dentener, F., Hurtmans, D., Cady- Pereira, K., Karagulian, F., Van Damme, M., Clerbaux, C., and Coheur P.-F.: Satellite monitoring of ammonia: A case study of the San Joaquin Valley, *J. Geophys. Res.*, 115, D13302, doi:10.1029/2009JD013291, 2010a.
- Clarisse, L., Hurtmans, D., Prata, A. J., Karagulian, F., Clerbaux, C., De Maziere, M., and Coheur, P.-F.: Retrieving radius, concentration, optical depth, and mass of different types of aerosols from high-resolution infrared nadir spectra. *Appl. Opt.*, 49, 3713–3722, 2010b.
- Clarisse, L., Prata, F., Lacour, J.-L., Hurtmans, D., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: A correlation method for volcanic ash detection using hyperspectral infrared measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L19806, doi:10.1029/2010GL044828, 2010c.
- Clarisse, L., Fromm, M., Ngadi, Y., Emmons, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., and Coheur, P.-F.: Intercontinental transport of anthropogenic sulfur dioxide and other pollutants: An infrared remote sensing case study, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L19806, 2011, doi:10.1029/2011GL048976, 2011a.
- Clarisse, L., Coheur, P.-F., Chefdeville, S., Lacour, J.-L., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: Infrared satellite observations of hydrogen sulfide in the volcanic plume of the August 2008 Kasatochi eruption, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L10804, doi:10.1029/2011GL047402, 2011b.
- Clarisse, L., R'Honi, Y., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: Thermal infrared nadir observations of 24 atmospheric gases, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L10802, doi:10.1029/2011GL047271, 2011c.
- Clarisse, L., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Ngadi, Y., and Coheur, P.-F.: Retrieval of sulphur dioxide from the infrared atmospheric sounding interferometer (IASI), *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 581-594, doi:10.5194/amt-5-581-2012, 2012.
- Clarisse, L., Coheur, P.-F., Prata, F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: A unified approach to infrared aerosol remote sensing and type specification, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2195-2221, doi:10.5194/acp-13-2195-2013, 2013a.

- Clarisse, L., Coheur, P.-F., Theys, N., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: The 2011 Nabro eruption, a SO₂ plume height analysis using IASI measurements, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 31161-31196, doi:10.5194/acpd-13-31161-2013, 2013b.
- Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Payan, S., Camy-Peyret C., and Megie, G.: Retrieval of CO columns from IMG/ADEOS spectra, *IEEE T. Geosci. Remote*, 37, 1657–1661, 1999.
- Clerbaux, C., George, M., Turquety, S., Walker, K. A., Barret, B., Bernath, P., Boone, C., Borsdorff, T., Cammas, J. P., Catoire, V., Coffey, M., Coheur, P.-F., Deeter, M., De Mazière, M., Drummond, J., Duchatelet, P., Dupuy, E., de Zafra, R., Eddounia, F., Edwards, D. P., Emmons, L., Funke, B., Gille, J., Griffith, D. W. T., Hannigan, J., Hase, F., Höpfner, M., Jones, N., Kagawa, A., Kasai, Y., Kramer, I., Le Flochmoën, E., Livesey, N. J., López-Puertas, M., Luo, M., Mahieu, E., Murtagh, D., Nédélec, P., Pazmino, A., Pumphrey, H., Ricaud, P., Rinsland, C. P., Robert, C., Schneider, M., Senten, C., Stiller, G., Strandberg, A., Strong, K., Sussmann, R., Thouret, V., Urban, J., and Wiacek, A.: CO measurements from the ACE-FTS satellite instrument: data analysis and validation using ground-based, airborne and spaceborne observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2569-2594, doi:10.5194/acp-8-2569-2008, 2008.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., et Coheur, P.-F. : Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041 6054, 2009.
- Clerbaux, C., Turquety, S., and Coheur, P. F.: Infrared remote sensing of atmospheric composition and air quality: Towards operational applications, *Comptes Rendus Geosciences*, 342, 349–356, doi:10.1016/j.crte.2009.09.010, 2010.
- Clerbaux, C., George, M., Hadji-Lazaro, J., Clarisse, L., Hurtmans, D., Coheur, P.-F.: Mesure du SO₂ et des cendres volcaniques avec IASI, *La Météorologie*, 74, 2011.
- Clerbaux, C. and Crevoisier, C.: New Directions: Infrared remote sensing of the troposphere from satellite: Less, but better, *Atmos. Environ.*, C. Clerbaux and Crevoisier, C.: New Directions: Infrared remote sensing of the troposphere from satellite: Less, but better, *Atmos. Environ.*, 72, 24-26 doi:10.1016/j.atmosenv.2013.01.057, 2013.
- Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5655-5667, doi:10.5194/acp-9-5655-2009, 2009.
- Daniel, J. S. and Solomon, S.: On the climate forcing of carbon monoxide, *J. Geophys. Res.*, 103, 13 249–13 260, 1998.
- Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., et Drummond, J. R. : Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D24306, doi:10.1029/2007JD008929, 2007.
- Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille J. C, Emmons, L. K., Francis, G., Ho, S.-P., Mao, D., Masters, D., Worden, H., Drummond, J. R. and Novelli, P. C.: The MOPITT version 4 CO product: Algorithm enhancements, validation, and long-term stability. *J. Geophys. Res.* 115, doi:10.1029/2009JD013005, 2010.

- Deeter, M. N., Martínez-Alonso, S., Edwards, D. P., Emmons, L. K., Gille, J. C., Worden, H. M., Pittman, J. V., Daube, B. C., and Wofsy, S. C.: Validation of MOPITT Version 5 thermal-infrared, near-infrared, and multispectral carbon monoxide profile retrievals for 2000–2011, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 6710–6725, doi:10.1002/jgrd.50272, 2013.
- Derwent, R. G., Collins, W. J., Johnson, C. E., and Stevenson, D. S.: Transient behaviour of tropospheric ozone precursors in a global 3-D CTM and their indirect greenhouse effects, *Clim. Change*, 49, 463–487, 2001.
- De Wachter, E., Barret, B., Le Flochmoën, E., Pavelin, E., Matricardi, M., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., George, M., Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Nedelec, P., and Cammas, J. P.: Retrieval of MetOp-A/IASI CO profiles and validation with MOZAIC data, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2843–2857, doi:10.5194/amt-5-2843-2012, 2012.
- Dufлот, V., Hurtmans, D., Clarisse, L., R'honi, Y., Vigouroux, C., De Mazière, M., Mahieu, E., Servais, C., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: Measurements of hydrogen cyanide (HCN) and acetylene (C₂H₂) from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 917–925, doi:10.5194/amt-6-917-2013, 2013.
- Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., LeFlochmoën, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D.: Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 611–630, doi:10.5194/amt-5-611-2012, 2012.
- Duncan, B. N., Logan, J. A., Bey, I., Megretskaia, I. A., Yantosca, R. M., Novelli, P. C., Jones, N. B., and Rinsland, C. P.: Global budget of CO, 1988–1997: Source estimates and validation with a global model, *J. Geophys. Res.*, 112, D22301, doi:10.1029/2007JD008459, 2007.
- EEA: European Environment Agency, 2013: <http://www.eea.europa.eu/>.
- Elguindi, N., Clark, H., Ordóñez, C., Thouret, V., Flemming, J., Stein, O., Huijnen, V., Moinat, P., Inness, A., Peuch, V.-H., Stohl, A., Turquety, S., Athier, G., Cammas, J.-P., and Schultz, M.: Current status of the ability of the GEMS/MACC models to reproduce the tropospheric CO vertical distribution as measured by MOZAIC, *Geosci. Model Dev.*, 3, 501–518, doi:10.5194/gmd-3-501-2010, 2010.
- Fischer, H., Birk, M., Blom, C., Carli, B., Carlotti, M., von Clarmann, T., Delbouille, L., Dudhia, A., Ehnhalt, D., Endemann, M., Flaud, J. M., Gessner, R., Kleinert, A., Koopman, R., Langen, J., López-Puertas, M., Mosner, P., Nett, H., Oelhaf, H., Perron, G., Remedios, J., Ridolfi, M., Stiller, G., and Zander, R.: MIPAS: an instrument for atmospheric and climate research, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2151–2188, doi:10.5194/acp-8-2151-2008, 2008.
- Fisher, J. A., Jacob, D. J., Purdy, M. T., Kopacz, M., Le Sager, P., Carouge, C., Holmes, C. D., Yantosca, R. M., Batchelor, R. L., Strong, K., Diskin, G. S., Fuelberg, H. E., Holloway, J. S., Hyer, E. J., McMillan, W. W., Warner, J., Streets, D. G., Zhang, Q., Wang, Y., and Wu, S.: Source attribution and interannual variability of Arctic pollution in spring constrained by aircraft (ARCTAS, ARCPAC) and satellite (AIRS) observations of carbon monoxide, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 977–996, doi:10.5194/acp-10-977-2010, 2010.
- Fokeeva, E. V., Safronov, A. N., Rakitin, V. S., Yurganov, L. N., Grechko, E. I., and Shumskii, R. A.: Investigation of the 2010 July–August fires impact on carbon monoxide atmospheric pollution in Moscow and its outskirts, estimating of emissions *Izv. Atmos. Ocean. Phys.*, 47, 6, 682–698, <http://dx.doi.org/10.1134/S0001433811060041>, 2011.

- Forkman, P., Christensen, O. M., Eriksson, P., Urban, J., and Funke, B.: Six years of mesospheric CO estimated from ground-based frequency-switched microwave radiometry at 57° N compared with satellite instruments, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2827-2841, doi:10.5194/amt-5-2827-2012, 2012.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Bernsten, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Van Dorland, R.: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., and Miller, H. L., Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA., 2007.
- Fortems-Cheiney, A., Chevallier, F., Pison, I., Bousquet, P., Carouge, C., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., George, M., Hurtmans, D., et Szopa, S. : On the capability of IASI measurements to inform about CO surface emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8735–8743, 2009.
- Fortems-Cheiney, A., Chevallier, F., Pison, I., Bousquet, P., Szopa, S., Deeter, M. N., and C. Clerbaux, C., Ten years of CO emissions as seen from Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *J. Geophys. Res.*, 116, D05304, doi:10.1029/2010JD014416, 2011.
- Funke, B., López-Puertas, M., García-Comas, M., Stiller, G. P., von Clarmann, T., Höpfner, M., Glatthor, N., Grabowski, U., Kellmann, S., and Linden, A.: Carbon monoxide distributions from the upper troposphere to the mesosphere inferred from 4.7 μm non-local thermal equilibrium emissions measured by MIPAS on Envisat, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2387-2411, doi:10.5194/acp-9-2387-2009, 2009.
- Gambacorta, A., Barnett, C., Wolf, W., King, T., Maddy, E., Strow, L., Xiong, X., Nalli, N., Goldberg, M.: An experiment using high spectral resolution NPP CrIS measurements for atmospheric trace gases: carbon monoxide retrievals impact study, *IEEE Geoscience and Remote Sensing Letters*, GRSL-00806-2013, 2013.
- Gazeaux, J., Clerbaux, C., George, M., Hadji-Lazaro, J., Kuttippurath, J., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Deshler, T., Kovilakam, M., Campbell, P., Guidard, V., Rabier, F., and Thépaut, J.-N.: Intercomparison of polar ozone profiles by IASI/MetOp sounder with 2010 Concordiasi ozonesonde observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 613-620, doi:10.5194/amt-6-613-2013, 2013.
- George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Turquety, S., Coheur, P.-F., Pommier, M., Hadji-Lazaro, J., Edwards, D. P., Worden, H., Luo, M., Rinsland, C., and McMillan, W.: Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission: evaluation with other space-borne remote sensors, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8317-8330, doi:10.5194/acp-9-8317-2009, 2009.
- Ginoux, P., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Dubovik, O., Hsu, N. C., and Van Damme, M.: Mixing of dust and NH₃ observed globally over anthropogenic dust sources, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7351-7363, doi:10.5194/acp-12-7351-2012, 2012.
- Granier, C., Bessagnet, B., Bond, T., D'Angiola, A., v. d. Gon, H. D., Frost, G. J., Heil, A., Kaiser, J. W., Kinne, S., Klimont, Z., Kloster, S., Lamarque, J.-F., Lioussé, C., Masui, T., Meleux, F., Mieville, A., Ohara, T., Raut, J.-C., Riahi, K., Schultz, M. G., Smith, S. J., Thomson, A., v. Aardenne, J., v. d. Werf, G. R., and v. Vuuren, D. P.: Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions of air pollutants at global and regional scales during the 1980–2010 period, *Clim. Change*, 109, 163–190, doi:10.1007/s10584-011-0154-1, 2011.

- Griffin, D., Walker, K. A., Franklin, J. E., Parrington, M., Whaley, C., Hopper, J., Drummond, J. R., Palmer, P. I., Strong, K., Duck, T. J., Abboud, I., Bernath, P. F., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Curry, K. R., Dan, L., Hyer, E., Kliever, J., Lesins, G., Maurice, M., Saha, A., Tereszchuk, K., and Weaver, D.: Investigation of CO, C₂H₆ and aerosols in a boreal fire plume over eastern Canada during BORTAS 2011 using ground- and satellite-based observations and model simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 10227-10241, doi:10.5194/acp-13-10227-2013, 2013.
- Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C. and Thiria, S.: An inversion algorithm using neural networks to retrieve atmospheric CO total columns from high-resolution nadir radiances, *J. Geophys. Res.*, 104, D19, doi: 10.1029/1999JD900431, 1999.
- Haywood, J. M., Jones, A., Clarisse, L., Bourassa, A., Barnes, J., Telford, P., Bellouin, N., Boucher, O., Agnew, P., Clerbaux, C., Coheur, P., Degenstein, D., and Braesicke, P.: Observations of the eruption of the Sarychev volcano and simulations using the HadGEM2 climate model, *J. Geophys. Res.*, 115, D21212, doi:10.1029/2010JD014447, 2010.
- Heald, C. L., J. L. Collett Jr., Lee, T., Benedict, K. B., Schwandner, F. M., Li, Y., Clarisse, L., Hurtmans, D. R., Van Damme, M., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Philip, S., Martin, R. V., and Pye, H. O. T.: Atmospheric ammonia and particulate inorganic nitrogen over the United States, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10295-10312, doi:10.5194/acp-12-10295-2012, 2012.
- Herbin, H., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Clarisse, L., and Coheur, P.-F.: H₂¹⁶O and HDO measurements with IASI/MetOp, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9433-9447, doi:10.5194/acp-9-9433-2009, 2009.
- Ho, S., Edwards, D. P., Gille, J. C., Luo, M., Osterman, G. B., Kulawik, S. S., and Worden, H.: A global comparison of carbon monoxide profiles and column amounts from Tropospheric Emission Spectrometer (TES) and Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 114, D21307, doi:10.1029/2009JD012242, 2009.
- Hoffmann, C. G., Raffalski, U., Palm, M., Funke, B., Golchert, S. H. W., Hochschild, G., and Notholt, J.: Observation of strato-mesospheric CO above Kiruna with ground-based microwave radiometry – retrieval and satellite comparison, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 2389-2408, doi:10.5194/amt-4-2389-2011, 2011.
- Huijnen, V., Williams, J., vanWeele, M., van Noije, T., Krol, M., Dentener, F., Segers, A., Houweling, S., Peters, W., de Laat, J., Boersma, F., Bergamaschi, P., van Velthoven, P., Le Sager, P., Eskes, H., Alkemade, F., Scheele, R., Nédélec, P., and Pätz, H.-W.: The global chemistry transport model TM5: description and evaluation of the tropospheric chemistry version 3.0, *Geosci. Model Dev.*, 3, 445–473, doi:10.5194/gmd-3-445-2010, 2010.
- Huijnen, V., Flemming, J., Kaiser, J. W., Inness, A., Leitão, J., Heil, A., Eskes, H. J., Schultz, M. G., Benedetti, A., Hadji-Lazaro, J., Dufour, G., and Eremenko, M.: Hindcast experiments of tropospheric composition during the summer 2010 fires over western Russia, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 4341-4364, doi:10.5194/acp-12-4341-2012, 2012.
- Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Wespes, C., Clarisse, L., Scharf, O., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., George, M., and Turquety, S.: FORLI radiative transfer and retrieval code for IASI. *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 113, 1391–1408, doi:10.1016/j.jqsrt.2012.02.036, 2012.
- Illingworth, S. M., Remedios, J. J., Boesch, H., Ho, S.-P., Edwards, D. P., Palmer, P. I., and Gonzi, S.: A comparison of OEM CO retrievals from the IASI and MOPITT instruments, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 775-793, doi:10.5194/amt-4-775-2011, 2011a.

- Illingworth, S. M., Remedios, J. J., Boesch, H., Moore, D. P., Sembhi, H., Dudhia, A., and Walker, J. C.: ULIRS, an optimal estimation retrieval scheme for carbon monoxide using IASI spectral radiances: sensitivity analysis, error budget and simulations, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 269-288, doi:10.5194/amt-4-269-2011, 2011b.
- Inness, A., Baier, F., Benedetti, A., Bouarar, I., Chabrillat, S., Clark, H., Clerbaux, C., Coheur, P., Engelen, R. J., Errera, Q., Flemming, J., George, M., Granier, C., Hadji-Lazaro, J., Huijnen, V., Hurtmans, D., Jones, L., Kaiser, J. W., Kapsomenakis, J., Lefever, K., Leitão, J., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M. G., Simmons, A. J., Suttie, M., Stein, O., Thépaut, J.-N., Thouret, V., Vrekoussis, M., Zerefos, C., and the MACC team: The MACC reanalysis: an 8 yr data set of atmospheric composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4073-4109, doi:10.5194/acp-13-4073-2013, 2013.
- Jacob, D. J. J. : Introduction to Atmospheric Chemistry, Princeton University Press, Princetone, New Jersey, 1999.
- Jacquinet-Husson, N.; Crepeau, L.; Armante, R.; Boutammine, C.; Chedin, A.; Scott, N. A.; Crevoisier, C.; Capelle, V.; Boone, C.; Poulet-Crovisier, N.; et al. The 2009 edition of the GEISA spectroscopic database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 112, 2395–2445, 2011.
- Jégou, F., Berthet, G., Brogniez, C., Renard, J.-B., François, P., Haywood, J. M., Jones, A., Bourgeois, Q., Lurton, T., Auriol, F., Godin-Beekmann, S., Guimbaud, C., Krysztofiak, G., Gaubicher, B., Chartier, M., Clarisse, L., Clerbaux, C., Balois, J. Y., Verwaerde, C., and Daugeron, D.: Stratospheric aerosols from the Sarychev volcano eruption in the 2009 Arctic summer, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 6533-6552, doi:10.5194/acp-13-6533-2013, 2013.
- Karagulian, F., Clarisse, L., Clerbaux, C., Prata, A. J., Hurtmans, D., and Coheur, P. F.: Detection of volcanic SO₂, ash, and H₂SO₄ using the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), *J. Geophys. Res.*, 115, D00L02, doi:10.1029/2009JD012786, 2010.
- Keim, C., Eremenko, M., Orphal, J., Dufour, G., Flaud, J.-M., Höpfner, M., Boynard, A., Clerbaux, C., Payan, S., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Claude, H., Dier, H., Johnson, B., Kelder, H., Kivi, R., Koide, T., López Bartolomé, M., Lambkin, K., Moore, D., Schmidlin, F. J., and Stübi, R.: Tropospheric ozone from IASI: comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes in the northern middle latitudes, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9329-9347, doi:10.5194/acp-9-9329-2009, 2009.
- Kerzenmacher, T., Dils, B., Kumps, N., Blumenstock, T., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Demoulin, P., García, O., George, M., Griffith, D. W. T., Hase, F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Jones, N., Mahieu, E., Notholt, J., Paton-Walsh, C., Raffalski, U., Ridder, T., Schneider, M., Servais, C., and De Mazière, M.: Validation of IASI FORLI carbon monoxide retrievals using FTIR data from NDACC, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2751-2761, doi:10.5194/amt-5-2751-2012, 2012.
- Klonecki, A., Pommier, M., Clerbaux, C., Ancellet, G., Cammas, J.-P., Coheur, P.-F., Cozic, A., Diskin, G. S., Hadji-Lazaro, J., Hauglustaine, D. A., Hurtmans, D., Khattatov, B., Lamarque, J.-F., Law, K. S., Nedelec, P., Paris, J.-D., Podolske, J. R., Prunet, P., Schlager, H., Szopa, S., and Turquety, S.: Assimilation of IASI satellite CO fields into a global chemistry transport model for validation against aircraft measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 4493-4512, doi:10.5194/acp-12-4493-2012, 2012.
- Kobayashi, H., Shimota, A., Kondo, K., Okumura, E., Kameda, Y., Shimoda, H., and Ogawa, T.: Development and evaluation of the interferometric monitor for greenhouse gases: a high

- throughput Fourier-transform infrared radiometer for nadir Earth observation, *Appl. Opt.*, 38, 6801–6807, 1999.
- Kononov, I. B., Beekmann, M., Kuznetsova, I. N., Yurova, A., and Zvyagintsev, A. M.: Atmospheric impacts of the 2010 Russian wildfires: integrating modelling and measurements of an extreme air pollution episode in the Moscow region, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10031–10056, doi:10.5194/acp-11-10031-2011, 2011.
- Kononov, I. B., Berezin, E. V., Ciais, P., Broquet, G., Beekmann, M., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Andreae, M. O., Kaiser, J. W., and Schulze, E.-D.: Constraining CO₂ emissions from open biomass burning by satellite observations of co-emitted species: a method and its application to wildfires in Siberia, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 3099–3168, doi:10.5194/acpd-14-3099-2014, 2014.
- Kopacz, M., Jacob, D. J., Fisher, J. A., Logan, J. A., Zhang, L., Megretskaia, I. A., Yantosca, R. M., Singh, K., Henze, D. K., Burrows, J. P., Buchwitz, M., Khlystova, I., McMillan, W. W., Gille, J. C., Edwards, D. P., Eldering, A., Thouret, V., and Nedelec, P.: Global estimates of CO sources with high resolution by adjoint inversion of multiple satellite datasets (MOPITT, AIRS, SCIAMACHY, TES), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 855–876, doi:10.5194/acp-10-855-2010, 2010.
- Krol, M., Peters, W., Hooghiemstra, P., George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., McInerney, D., Sedano, F., Bergamaschi, P., El Hajj, M., Kaiser, J. W., Fisher, D., Yershov, V., and Muller, J.-P.: How much CO was emitted by the 2010 fires around Moscow?, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4737–4747, doi:10.5194/acp-13-4737-2013, 2013.
- Krysztofiak, G., Thiéblemont, R., Huret, N., Catoire, V., Té, Y., Jégou, F., Coheur, P. F., Clerbaux, C., Payan, S., Drouin, M. A., Robert, C., Jeseck, P., Attié, J.-L., and Camy-Peyret, C.: Detection in the summer polar stratosphere of pollution plume from East Asia and North America by balloon-borne in situ CO measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11889–11906, doi:10.5194/acp-12-11889-2012, 2012.
- Kumar, R., Barth, M. C., Pfister, G. G., Naja, M., and Brasseur, G. P.: WRF-Chem simulations of a typical pre-monsoon dust storm in northern India: influences on aerosol optical properties and radiation budget, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 21837–21881, doi:10.5194/acpd-13-21837-2013, 2013.
- Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Janssens-Maenhout, G., Fukui, T., Kawashima, K., and Akimoto, H.: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11019–11058, doi:10.5194/acp-13-11019-2013, 2013.
- Lacour, J.-L., Risi, C., Clarisse, L., Bony, S., Hurtmans, D., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F.: Mid-tropospheric δD observations from IASI/MetOp at high spatial and temporal resolution, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10817–10832, doi:10.5194/acp-12-10817-2012, 2012.
- Logan, J. A., Prather, M. J., Wofsy, S. C., and McElroy, M. B.: Tropospheric chemistry: A global perspective, *J. Geophys. Res.*, 86, 7210–7254, 1981.
- Luo, M., Rinsland, C. P., Rodgers, C. D., Logan, J. A., Worden, H., Kulawik, S., Eldering, A., Goldman, A., Shephard, M. W., Gunson, M., and Lampel, M.: Comparison of carbon monoxide measurements by TES and MOPITT: Influence of a priori data and instrument characteristics on nadir atmospheric species retrievals, *J. Geophys. Res.*, 112, D09303, doi:10.1029/2006JD007663, 2007.

- Luo, M., Read, W., Kulawik, S., Worden, H., Livesey, N., Bowman, K. and Herman, R.: Carbon monoxide (CO) vertical profiles derived from joined TES and MLS measurements, *J. Geophys. Res.*, 118, 1–13, doi:10.1002/jgrd.50800, 2013
- Malkov, I. P., Yurganov, L. N., Dianov-Klokov, V.I.: Measurements of CO and CH₄ contents in the Northern and Southern hemispheres (preliminary results), *Izv. Acad. Sci. USSR, Atmos. Oceanic Phys., Engl. Transl.*, 12, 754–757, 1976.
- Martínez-Alonso, S., Deeter, M.N., Worden, H.M., Clerbaux, C., Mao, D. and Gille, J.C.: First satellite identification of volcanic carbon monoxide, *Geophys. Res. Lett.*, 39, L21809, doi:10.1029/2012GL053275, 2012.
- Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J.: First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5073–5091, doi:10.5194/acp-9-5073-2009, 2009.
- Nédélec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoœur, F., Cayez, G., et Marizy, C.: An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1551–1564, 2003.
- Newman, S. M., Clarisse, L., Hurtmans, D., Marenco, F., Johnson, B., Turnbull, K., Havemann, S., Baran, A. J., O’Sullivan, D., and Haywood, J.: A case study of observations of volcanic ash from the Eyjafjallajökull eruption: 2. Airborne and satellite radiative measurements, *J. Geophys. Res.*, 117, D00U13, doi:10.1029/2011JD016780, 2012.
- Novelli, P. C., Masarie, K. A., and Lang, P. M.: Distributions and recent changes in carbon monoxide in the lower troposphere, *J. Geophys. Res.*, 103, 19015–19033, 1998.
- Parrington, M., Palmer, P. I., Henze, D. K., Tarasick, D. W., Hyer, E. J., Owen, R. C., Helmig, D., Clerbaux, C., Bowman, K. W., Deeter, M. N., Barratt, E. M., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Jiang, Z., George, M., and Worden, J. R.: The influence of boreal biomass burning emissions on the distribution of tropospheric ozone over North America and the North Atlantic during 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2077–2098, doi:10.5194/acp-12-2077-2012, 2012.
- Pommier, M., Law, K. S., Clerbaux, C., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Schlager, H., Ancellet, G., Paris, J.-D., Nédélec, P., Diskin, G. S., Podolske, J. R., Holloway, J. S., and Bernath, P.: IASI carbon monoxide validation over the Arctic during POLARCAT spring and summer campaigns, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10655–10678, doi:10.5194/acp-10-10655-2010, 2010.
- Pommier, M., Clerbaux, C., Law, K. S., Ancellet, G., Bernath, P., Coheur, P.-F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Nédélec, P., Paris, J.-D., Ravetta, F., Ryerson, T. B., Schlager, H., and Weinheimer, A. J.: Analysis of IASI tropospheric O₃ data over the Arctic during POLARCAT campaigns in 2008, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7371–7389, doi:10.5194/acp-12-7371-2012, 2012.
- Pommier, M., Lacour, J.-L., Risi, C., Bréon, F.-M., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Griбанov, K., Hurtmans, D., Jouzel, J., and Zakharov, V.: Observation of tropospheric δ D by IASI over the Western Siberia: comparison with a GCM, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 6, 11055–11092, doi:10.5194/amtd-6-11055-2013, 2013.

- Prather, M., Derwent, R., Ehhalt, D., Fraser, P., Sanhueza, E., Zhou, X.: Chapter 2.2: Radiative Forcing of Climate Change, in *Climate Change 1995, The Science of Climate Change*, Intergovernmental Panel on Climate Change, J.T. Houghton et al., eds., Cambridge U. Press, pp. 86-10, 1996.
- Prather, M., and Ehhalt, D.: Atmospheric chemistry and green-house gases, in: *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, edited by: Houghton, J. T., Ding, Y., Griggs, D. J., et al., 239–287, Cambridge University Press, Cambridge, UK, 2001.
- Razavi, A., Clerbaux, C., Wespes, C., Clarisse, L., Hurtmans, D., Payan, S., Camy-Peyret, C., and Coheur, P. F.: Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7889-7899, doi:10.5194/acp-9-7889-2009, 2009.
- Razavi, A., Karagulian, F., Clarisse, L., Hurtmans, D., Coheur, P. F., Clerbaux, C., Müller, J. F., and Stavrakou, T.: Global distributions of methanol and formic acid retrieved for the first time from the IASI/MetOp thermal infrared sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 857-872, doi:10.5194/acp-11-857-2011, 2011.
- Reichle, H. G., Jr., Connors, V. S., Holland, J. A., Hypes, W. D., Wallio, H. A., Casas, J. C., Gormsen, B. B., Saylor, M. S., Hesketh, W. D.: Middle and upper tropospheric carbon monoxide mixing ratios as measured by a satellite borne remote sensor during November 1981, *J. Geophys. Res.*, 91, 10,865, 1986.
- Reichle, H. G., Jr., Connors, V. S., Holland, J. A., Sherrill, R. T., Wallio, H. A., Casas J. C., Condon, E. P., Gormsen, B. B., Seiler, W.: The distribution of middle tropospheric carbon monoxide during early October 1984, *J. Geophys. Res.*, 95, D7, 9845–9856, doi: 10.1029/JD095iD07p09845, 1990.
- R'Honi, Y., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Duflot, V., Turquety, S., Ngadi, Y., and Coheur, P.-F.: Exceptional emissions of NH₃ and HCOOH in the 2010 Russian wildfires, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4171-4181, doi:10.5194/acp-13-4171-2013, 2013.
- Rix, M., Valks, P., Hao, N., van Geffen, J., Clerbaux, C., Clarisse, L., Coheur, P.-F., Loyola, D. G., Erbertseder, T., Zimmer, W., and Emmadi, S.: Satellite monitoring of volcanic sulfur dioxide emissions for early warning of volcanic hazards, *IEEE J. Selec. Top. Appl. Earth Obs. Remote Sens.*, 2, 196–206, 2009.
- Rodgers, C. D. : *Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice*, Ser. Atmos. Ocean. Planet. Phys. 2, World Sci., Hackensack, N.J., 2000.
- Rodgers, C. D. and Connor, B. J.: Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4116, doi:10.1029/2002JD002299, 2003.
- Roiger, A., Thomas, J.-L., Schlager, H., Law, K., Kim, J., Reiter, A., Weinzierl, B., Raut, J.-C., Marelle, L., Onishi, T., Schäfler, A., Baumann, R., Rose, M., Bouarar, I., Flemming, J., George, M., Clerbaux, C.: Quantifying emerging local anthropogenic emissions in the Arctic region: the ACCESS aircraft campaign experiment, *Bulletin of American Meteorological Society*, soumis, 2014.
- Rothman, L. S., Jacquemart, D., Barbe, A., Benner, D. C., Birk, M., Brown, Jr. L. R., Chackerian, C., Chance, K., Coudert, L. H., Carleer, M. R., Dana, V., Devi, V. M., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Hartmann, J.-M., Jucks, K. W., Maki, A. G., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Orphal, J., Perrin, A., Rinsland, C. P., Smith, M. A. H., Tennyson, J., Tolchenov, R. N., Toth,

- R. A., Vander Auwera, J., Varanasi, P., and Wagner, G.: The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 96, 139–204, 2005.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Babikov, Y., Barbe, A., Benner, D. C., Bernath, P. F., Birk, M., Bizzocchi, L., Boudon, V., Brown, L. R., et al. The HITRAN2012 Molecular Spectroscopic Database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 130, 4–50, 2013.
- Safieddine, S., Clerbaux, C., George, M., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Wespes, C., Loyola, D., Valks, P., and Hao N.: Tropospheric ozone and nitrogen dioxide measurements in urban and rural regions as seen by IASI and GOME-2, *J. Geophys. Res.*, 118, 10,555–10,566, doi:10.1002/jgrd.50669, 2013.
- Scannell, C., Hurtmans, D., Boynard, A., Hadji-Lazaro, J., George, M., Delcloo, A., Tuinder, O., Coheur, P.-F., and Clerbaux, C.: Antarctic ozone hole as observed by IASI/MetOp for 2008–2010, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 123–139, doi:10.5194/amt-5-123-2012, 2012.
- Shindell, D. T., Faluvegi, G., Stevenson, D. S., Krol, M. C., Emmons, L. K., Lamarque, J.-F., Pétron, G., Dentener, F. J., Ellingsen, K., Schultz, M. G., Wild, O., Amann, M., Atherton, C. S., Bergmann, D. J., Bey, I., Butler, T., Cofala, J., Collins, W. J., Derwent, R. G., Doherty, R. M., Drevet, J., Eskes, H. J., Fiore, A. M., Gauss, M., Hauglustaine, D. A., Horowitz, L. W., Isaksen, I. S. A., Lawrence, M. G., Montanaro, V., Müller, J.-F., Pitari, G., Prather, M. J., Pyle, J. A., Rast, S., Rodriguez, J. M., Sanderson, M. G., Savage, N. H., Strahan, S. E., Sudo, K., Szopa, S., Unger, N., van Noije, T. P. C., and Zeng, G.: Multimodel simulations of carbon monoxide: comparison with observations and projected near-future changes, *J. Geophys. Res.*, 111, D19306, doi:10.1029/2006JD007100, 2006.
- Schlüssel, P., Hultberg, T. H., Phillips, P. L., August, T., Calbet, X.: The operational IASI Level 2 processor, *Adv. in space res.*, 36, 982–988, 2005.
- Sodemann, H., Pommier, M., Arnold, S. R., Monks, S. A., Stebel, K., Burkhardt, J. F., Hair, J. W., Diskin, G. S., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Schlager, H., Blechschmidt, A.-M., Kristjánsson, J. E., and Stohl, A.: Episodes of cross-polar transport in the Arctic troposphere during July 2008 as seen from models, satellite, and aircraft observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3631–3651, doi:10.5194/acp-11-3631-2011, 2011.
- Stein, O., Schultz, M. G., Bouarar, I., Clark, H., Huijnen, V., Gaudel, A., George, M., and Clerbaux, C.: On the wintertime low bias of Northern Hemisphere carbon monoxide in global model studies, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 245–301, doi:10.5194/acpd-14-245-2014, 2014.
- Stavrakou, T., Guenther, A., Razavi, A., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Karagulian, F., De Mazière, M., Vigouroux, C., Amelynck, C., Schoon, N., Laffineur, Q., Heinesch, B., Aubinet, M., Rinsland, C., and Müller, J.-F.: First space-based derivation of the global atmospheric methanol emission fluxes, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 4873–4898, doi:10.5194/acp-11-4873-2011, 2011.
- Stavrakou, T., Müller, J.-F., Peeters, J., Razavi, A., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., De Mazière, M., Vigouroux, C., Deutscher, N. M., Griffith, D. W. T., Jones, N., and Paton-Walsh, C.: Satellite evidence for a large source of formic acid from boreal and tropical forests, *Nature Geosci.*, 5, 26–30, doi:10.1038/ngeo1354, 2012.
- Stremme, W., Grutter, M., Rivera, C., Bezanilla, A., Garcia, A. R., Ortega, I., George, M., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Hannigan, J. W., and Coffey, M. T.: Top-down estimation of

- carbon monoxide emissions from the Mexico Megacity based on FTIR measurements from ground and space, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 1357-1376, doi:10.5194/acp-13-1357-2013, 2013.
- Sutton, M. A., Reis, S., Riddick, S. N., Dragosits, U., Nemitz, E., Theobald, M. R., Tang, Y. S., Braban, C. F., Veno, M., Dore, A. J., Mitchell, R. F., Wanless, S., Daunt, F., Fowler, D., Blackall, T. D., Milford, C., Flechard, C. R., Loubet, B., Massad, R., Cellier, P., Personne, E., Coheur, P. F., Clarisse, L., Van Damme, M., Ngadi, Y., Clerbaux, C., Skjøth, C. A., Geels, C., Hertel, O., Wichink Kruit, R. J., Pinder, R. W., Bash, J. O., Walker, J. T., Simpson, D., Horváth, L., Misselbrook, T. H., Bleeker, A., Dentener, F., and de Vries, W.: Towards a climate-dependent paradigm of ammonia emission and deposition, *Philos. Trans. R. Soc. B. Biol. Sci.*, 368, 20130166, doi:10.1098/rstb.2013.0166, 2013.
- Té, Y., Dieudonné, E., Jeseck, P., Hase, F., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Ravetta, F., Payan, S., Pépin, I., Hurtmans, D., Pelon, J., and Camy-Peyret, C.: Carbon monoxide urban emission monitoring: a ground-based FTIR case study, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 29, 911-921, doi:10.1175/JTECH-D-11-00040.1, 2012.
- Tereszczuk, K. A., González Abad, G., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Coheur, P.-F., and Bernath, P. F.: ACE-FTS measurements of trace species in the characterization of biomass burning plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12169-12179, doi:10.5194/acp-11-12169-2011, 2011.
- Theys, N., Campion, R., Clarisse, L., Brenot, H., van Gent, J., Dils, B., Corradini, S., Merucci, L., Coheur, P.-F., Van Roozendael, M., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Tait, S., and Ferrucci, F.: Volcanic SO₂ fluxes derived from satellite data: a survey using OMI, GOME-2, IASI and MODIS, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5945-5968, doi:10.5194/acp-13-5945-2013, 2013.
- Thompson, A. M., The oxidizing capacity of the Earth's atmosphere: Probable past and future changes, *Science*, 256, 1157-1165, 1992.
- Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution infrared spectra, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 24, 2198, doi:10.1029/2002GL016431, 2002.
- Turquety, S., Clerbaux, C., Law, K., Coheur, P.-F., Cozic, A., Szopa, S., Hauglustaine, D. A., Hadji-Lazaro, J., Gloudemans, A. M. S., Schrijver, H., Boone, C. D., Bernath, P. F., and Edwards, D. P.: CO emission and export from Asia: an analysis combining complementary satellite measurements (MOPITT, SCIAMACHY and ACE-FTS) with global modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5187-5204, doi:10.5194/acp-8-5187-2008, 2008.
- Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Josset, D., and Tsamalis, C.: Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals: analysis of the summer 2007 Greek fires, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4897-4913, doi:10.5194/acp-9-4897-2009, 2009.
- Walker, K. A., Randall, C. E., Trepte, C. R., Boone, C. D., and Bernath, P. F.: Initial validation comparisons for the Atmospheric Chemistry Experiment (ACE-FTS), *Geophys. Res. Lett.*, 32, L16S04, doi:10.1029/2005GL022388, 2005.
- Van Damme, M., Clarisse, L., Heald, C. L., Hurtmans, D., Ngadi, Y., Clerbaux, C., Dolman, A. J., Erisman, J. W., and Coheur, P. F.: Global distributions and trends of atmospheric ammonia (NH₃) from IASI satellite observations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 24301-24342, doi:10.5194/acpd-13-24301-2013, 2013.

- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., DeFries, R. S., Jin, Y., and van Leeuwen, T. T.: Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11707–11735, doi:10.5194/acp-10-11707-2010, 2010.
- Wang, J., Gille, J. C., Bailey, P. L., Pan, L., Edwards, D., and Drummond, J. R.: Retrieval of tropospheric carbon monoxide profiles from high-resolution interferometer observations: A new digital gas correlation (DGC) method and applications, *J. Atmos. Sci.*, 56, 219–232, 1999.
- Warner, J., Comer, M. M., Barnet, C. D., McMillan, W. W., Wolf, W., Maddy, E., and Sachse, G.: A comparison of satellite tropospheric carbon monoxide measurements from AIRS and MOPITT during INTEx-A, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 112, D12S17, doi:10.1029/2006JD007925, 2007.
- Warner, J., Carminati, F., Wei, Z., Lahoz, W., and Attié, J.-L.: Tropospheric carbon monoxide variability from AIRS under clear and cloudy conditions, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 12469–12479, doi:10.5194/acp-13-12469-2013, 2013a.
- Warner, J. X., Yang, R., Wei, Z., Carminati, F., Tangborn, A., Sun, Z., Lahoz, W., Attié, J.-L., El Amraoui, L., and Duncan, B.: Global carbon monoxide products from combined AIRS, TES and MLS measurements on A-train satellites, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 15409–15441, doi:10.5194/acpd-13-15409-2013, 2013b.
- Wells, K. C., Millet, D. B., Hu, L., Cady-Pereira, K. E., Xiao, Y., Shephard, M. W., Clerbaux, C. L., Clarisse, L., Coheur, P.-F., Apel, E. C., de Gouw, J., Warneke, C., Singh, H. B., Goldstein, A. H., and Sive, B. C.: Tropospheric methanol observations from space: retrieval evaluation and constraints on the seasonality of biogenic emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 5897–5912, doi:10.5194/acp-12-5897-2012, 2012.
- Wespes, C., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Santee, M. L., Martin, R. V., and Coheur, P. F.: Global distributions of nitric acid from IASI/MetOP measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7949–7962, doi:10.5194/acp-9-7949-2009, 2009.
- Wespes, C., Emmons, L., Edwards, D. P., Hannigan, J., Hurtmans, D., Saunio, M., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Coffey, M. T., Batchelor, R. L., Lindenmaier, R., Strong, K., Weinheimer, A. J., Nowak, J. B., Ryerson, T. B., Crounse, J. D., and Wennberg, P. O.: Analysis of ozone and nitric acid in spring and summer Arctic pollution using aircraft, ground-based, satellite observations and MOZART-4 model: source attribution and partitioning, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 237–259, doi:10.5194/acp-12-237-2012, 2012.
- Wild, O., and Prather, M. J.: Excitation of the primary tropospheric chemical mode in a global three-dimensional model, *J. Geophys. Res.*, 105, 24, 647–24, 660, 2000.
- Williams, J. E., van Velthoven, P. F. J., and Brenninkmeijer, C. A. M.: Quantifying the uncertainty in simulating global tropospheric composition due to the variability in global emission estimates of Biogenic Volatile Organic Compounds, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2857–2891, doi:10.5194/acp-13-2857-2013, 2013.
- Worden, H. M., Deeter, M. N., Frankenberg, C., George, M., Nichitiu, F., Worden, J., Aben, I., Bowman, K. W., Clerbaux, C., Coheur, P. F., de Laat, A. T. J., Detweiler, R., Drummond, J. R., Edwards, D. P., Gille, J. C., Hurtmans, D., Luo, M., Martínez-Alonso, S., Massie, S., Pfister, G., and Warner, J. X.: Decadal record of satellite carbon monoxide observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 837–850, doi:10.5194/acp-13-837-2013, 2013.

- Yurganov, L. N., Rakitin, V., Dzhola, A., August, T., Fokeeva, E., George, M., Gorchakov, G., Grechko, E., Hannon, S., Karpov, A., Ott, L., Semutnikova, E., Shumsky, R., and Strow, L.: Satellite- and ground-based CO total column observations over 2010 Russian fires: accuracy of top-down estimates based on thermal IR satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7925-7942, doi:10.5194/acp-11-7925-2011, 2011.
- Zhou, D. K., Larar, A. M., Liu, X., Smith, W. L., Strow, L. L., Yang, P., Schlüssel, P., and Calbet, X.: Global land surface emissivity retrieved from satellite ultraspectral IR measurements, *IEEE T. Geosci. Remote Sens.*, 49(4), 1277–1290, doi:10.1109/TGRS.2010.2051036, 2011.

Abréviations et acronymes

ACE Atmospheric Chemistry Experiment

ADEOS Advanced Earth Observing Satellite

AIRS Atmospheric InfraRed Sounders

AVHRR Advanced Very High Resolution Radiometer

CCGG Carbon Cycle-Greenhouse Gases group

CMDL Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory

CNES Centre National d'Etudes Spatiales

CrIS Cross-track Infrared Sounder

CSA Canadian Space Agency

DOFS Degree Of Freedom for Signal

ECMWF European Centre for Medium-Range Weather Forecasts

EEA European Environment Agency

ESA Agence Spatiale Européenne (en anglais : European Spatial Agency)

ESRL Earth System Research Laboratory

FORLI-CO Fast Optimal Retrievals on Layers for IASI-CO

FOV Field Of View

FTS Fourier Transform Spectrometer

GMES Global Monitoring for Environment and Security

GOME-2 Global Ozone Monitoring Experiment

IAGOS Integration of routine Aircraft measurements into a Global Observing System

IASI Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge ou Infrared Atmospheric Sounding Interferometer

ICOS Integrated Carbon Observation System

IIS Integrated Imaging Subsystem

IMG Interferometric Monitor for Greenhouse Gases

IR InfraRouge

LATMOS Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales

LPMAA Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique

MACC Monitoring Atmospheric Composition and Climate

MAPS Measurement of Air Pollution from Space

MetOp Météorologie Opérationnelle

MIPAS Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding

MOPITT Measurements Of Pollution in The Troposphere

MOZAIC Measurement of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by Airbus in-service airCraft

MOZART Model for Ozone and Related chemical Tracers

NASA National Aeronautics and Space Administration

NASDA National Space Development Agency of Japan

NCAR National Center for Atmospheric Research

NDACC Network for the Detection of Atmospheric Composition Change

NOAA National Oceanic and Atmospheric Administration

NEDT Noise Equivalent Temperature Difference

NOAA National Oceanic and Atmospheric Administration

OEM Optimal Estimation Method

RMS Root-Mean-Square

SZA Solar Zenith Angle

TCCON Total Carbon Column Observing Network

TEC Technical Expertise Center

TES Tropospheric Emission Spectrometer

TF Transformée de Fourier

ULB Université Libre de Bruxelles

VMR Volume Mixing Ratio